

**KOPI****Søknad om patent.**

Søknadsskriv

1a - s

23. SEP 97

974399

Til

Patentstyret  
Boks 8160 Dep.  
0033 Oslo

Utfylles av Styret

Patentsøknad nr.

Inngivelsesdag

Alment tilgjengelig

Behandler medlem UZ

Int. Cl.<sup>6</sup> BOLDSøkers/fullmektigs referanse  
(angis hvis ønsket):

O.nr. C95132

JFL/GJ

23. sep 97 582736

23. sep 97 582737

1998 MARS 27

Alm. tilgj.

P974399 1

1.000,00

974399 2

3.200,00

Oppfinnelsens  
benevnelse:Ioneleder-stabel med forskjøvne tetninger og forspennings-  
elektroderSøknaden er  
en internasjonal søknad  
som videreføres etter  
patentlovens § 31:

Den internasjonale søknads nummer

Den internasjonale søknads inngivelsesdag

Søker:

Navn, bopel og adresse.  
(Hvis patent søkes av flere.  
Opplysning om hvem som skal  
være bemyndiget til å motta  
meddelelser fra Styret på vegne  
av søkerne).

Air Products and Chemicals, Inc.

7201 Hamilton Boulevard, Allentown, PA 18195-1501, USA.

(Fortsett om nødvendig på neste side)

Oppfinner:

Navn og (privat-) adresse.  
(Fortsett om nødvendig på neste side)

Se eget ark

**JENS F. C. LANGFELDT**  
Sivilingeniør i firma  
**BRYNS PATENTKONTOR A/S**  
KARL JOHANS GT. 25, OSLO 1

Fullmektig:

Hvis søknad tidligere  
er inngitt i eller  
utenfor riket:

(Fortsett om nødvendig på neste side)

Prioritet kreves fra dato.....26.9.1996..... sted ....USA..... nr. 08./721640.....

Prioritet kreves fra dato..... sted ..... nr.....

Prioritet kreves fra dato..... sted ..... nr.....

Prioritet kreves fra dato..... sted ..... nr.....

Hvis avdelt søknad:

Den opprinnelige søknads nr.:.....og dennes inngivelsesdag .....

Hvis utskilt søknad:

Den opprinnelige søknads nr.:.....begjært inngivelsesdag .....

974399

Angivelse av tegnings-  
figur som ønskes  
publisert sammen med  
sammendraget

Fig. nr. ....6B

POSTADRESSE  
Boks 8160 Dep.  
0033 OsloKONTORADRESSE  
København gt. 10  
OsloTELEFON  
22 38 73 00TELEKS  
19 152  
nopat nTELEFAKS  
22 38 73 01POSTGIRO  
0808 5170709BANKGIRO  
1600.40.39916

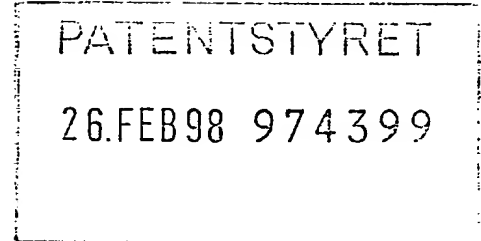
4c

JFL/KG/GJ/LW/OG

25.02.98

C95132  
173PNO05573

AIR PRODUCTS AND CHEMICALS, INC.  
7201 Hamilton Boulevard  
Allentown, PA 18195-1501  
USA



Oppfinner(e):

Stuart Adler,	1723 S. 1800E, Salt Lake City, UT 84108, USA
Raymond Ashton Cutler	1574 South 1175 East, Bountiful, Utah 84010, USA
Brett Tamatea Henderson,	2022 Imperial Street, Salt Lake City, UT 84105, USA
Jimmy Ludlow,	1925 E. 1700S, Salt Lake City, UT 84108, USA
Robin Edward Richards,	1350 Michael Way, Lansdale, PA 19446, Storbritannia
Dale M. Taylor,	1175 Castlecreek Circle, Salt Lake City, UT 84117, USA
Merrill Anderson Wilson,	3528 West 7260 South, West Jordan, UT 84084, USA

Ionelederstabel med forskjövne forseglinger og forspenningselektroder

## TEKNISK FELT FOR OPPFINNELSEN

Oppfinnelsen angår en elektrokjemisk anordning for gjenvinning av oksygen fra en oksygenholdig gass og særlig en forbedret stabelutførelse for plane elektrolytiske serieceller.

## BAKGRUNN FOR OPPFINNELSEN

Ioneledende uorganiske keramiske og submaterialer med visse sammensetninger transporterer eller slipper igjennom ioner ved høye temperaturer og dette fenomen er grunnlaget for praktiske anvendelser i brenselceller, gassanalyse og overvåkning og separasjon av gassblandinger. I et antall slike praktiske anvendelser vandrer oksygenioner som strøm under en påtrykket spenningsgradient gjennom en oksygenion-ledende elektrolytt fra katodesiden der oksygenioner frembringes ved reduksjon av oksygen eller andre gasser til anoden eller oksygensiden der oksygenioner forbrukes for å danne oksyd eller andre gasser.

Oksygenion-ledende faste elektrolytter kan utføres som rør, flat plate og bikake eller monolitisk flercelleform. Den flate plateform der en flerhet av plateelektrolytiske celler stables for å arbeide elektrisk i serie er foretrukket ved mange anvendelser fordi de er lette å sette sammen og har kompakte dimensjoner. Den praktiske anvendelse av ioneledersystemet for gasseparering, bortsett fra formgivningen, krever at cellene arbeider under et forskjellig trykk og/eller med forskjellige gassammensetninger mellom matsiden (katoden) og permeatsiden (anoden). Ved separering av oksygen fra en oksygenholdig gass f.eks. kan trykket og/eller gassammensetningen av den oksygenholdige mategass og den oksygenfattige avløpsgass (også betegnet som ikke-permeat gass) være forskjellig fra trykket og/eller gassammensetningen for det oksygen som dannes ved anoden (også betegnet som permeatgass) avhengig av stabelutformningen og kravene til produktet. Gasstette pakninger mellom valgte konstruksjonskomponenter i systemet er derfor nødvendig for å opprettholde produktgassens renhet enten produktet er oksygenfattig utløpsgass eller oksygen med høy renhet som dannes ved anoden.

Et oksygen ion-ledende system som har en skive eller flat stabelutformning er beskrevet i US patent 4,885,142 der en oksygenholdig gass innføres gjennom aksiale matåpninger, flyter radielt over de stablede elektrolyttskiver og løper ut gjennom en aksial utløpsåpning som fortrinnsvis står sentralt. Oksygenproduktene trekkes ut gjennom en

egen rekke med aksiale utløpsåpninger. Mategass og produktgass blir skilt fra hverandre med sammenpassende deler av skiveanordningen som ifølge beskrivelsen danner et i det vesentlige tettende forhold. Stabelen arbeider uten trykkforskjell over cellene og bruk av tetningsmidler er ikke beskrevet. Et tilsvarende system er omhandlet i artikler av J.W. Sutor med flere, med tittelen "Oxygen Separation From Air Using Zirconia Solid Electrolyte Membranes" i Proceedings of the 23rd Intersociety Energy Conversion Conference, vol. 2, ASME, New York, 1988, s. 273-277 og av D.J. Clark et al. med tittelen "Separation of Oxygen By Using Zirconia Solid Electrolyte Membranes" i Gas Separation and Purification, 1992, vol. 6, nr. 4, s. 201 - 205.

U.S. patent 5,186,806 beskriver en flat, fast elektrolyttcelle-utformning der avvekslende plater og bæredeler til gassfordeling er stablet i serie. Ved en utformning er platene laget av ione-ledende uporøst materiale og bæredelene er laget av uporøst elektrisk ledende materiale. En rekke åpninger og boss i bæredelene passer sammen med åpninger i elektrolyttplatene for å skape et strømningsmønster der mateluft strømmer radialt over katodesidene av elektrolyttplatene i en retning innad og den oksygenfattige luft trekkes ut aksialt gjennom en sentralt plassert kanal som er dannet med like åpninger i elektrolyttplatene og bæredelene. Oksygen som dannes på anodesiden av elektrolyttplatene flyter radialt utad og trekkes ut gjennom en rekke aksiale kanaler som dannes av separate like åpninger i elektrolyttplaten og fordelingsdeler. Tetning mellom oksygensiden og mategassidene på stabelkomponentene blir ifølge beskrivelsen oppnådd ved direkte kontakt mellom elektrolyttplater og flate boss på bæredelene og også ved stabelens omkrets ved kontakt mellom sammenhengende flate hevede ringer på bæredelene og på de flate elektrolyttplater. Noe tetningsmiddel er ikke beskrevet i tetningsområdene som dannes ved direkte kontakt mellom områder på bæredelene og elektrolyttplatene. Tetningsområdene som er dannet av bossene i kontakt med anodesiden og katodesiden av hver elektrolyttplate er forskjøvet radialt og i omkretsen mens de tilsvarende omløpende tetninger passer sammen og ligger direkte mot hverandre.

En ioneledeanordning med en flerhet av elektrolyttplater i et stablet mønster, er beskrevet i US patent nr. 5,298,138 der det ikke er benyttet bærende elektrisk ledende forbindelser. Elektrolyttplatene er adskilt med avvekslende avstandsholdere laget av elektrolyttmaterialer som er festet nær kantene av platene med en glasstetning for å muliggjøre tverrstrømming. Selv om denne stabelutførelse er forenklet ved at forbindelsene ikke er nødvendige, blir elektrolyttplatene ikke understøttet på

midtpartiet, noe som bare tillater drift med meget små trykkforskjeller mellom anode- og katodesidene i cellene.

Utlagt europeisk patentsøknad nr. 0 682 379 beskriver en flat elektrokjemisk anordning  
 5 for gasseparering der avvekslende elektrolyttplater og elektrisk ledende  
 sammenkoblinger er satt sammen i et stabelmønster. Anoden og katoden som er i  
 elektrisk kontakt med motstående sider av hver elektrolyttplate strekker seg likt ut, dvs.  
 kongruent. Sammenkoblingene inneholder kanaler som er slik utført at mategass  
 strømmer gjennom katodesiden som tverrstrøm og oksygen som dannes på anodesiden  
 10 trekkes ut i en tverrstrøm med strømningsretning perpendikulært på mategasstrømmen.  
 Sammenkoblingene og elektrolyttplatene er forbundet med områder med glassforsegling  
 parallelt med kanalene i sammenkoblingene. Deler av anode- og katodeforseglingene  
 står direkte mot hverandre på hver elektrolyttplate.

15 En teknisk rapport med tittelen "Stacking Oxygen Separation Cells" av C.J. Morrissey i  
 NASA Tech Brief, Vol. 15, nr. 6, emne #25, juni 1991 beskriver plane stablede  
 elektrolyttceller som omfatter avvekslende elektrolyttplater og gassfordelende  
 sammenkoblinger. Anoden og katoden på hver elektkrolyttplate står direkte overfor  
 hverandre over elektrolyttplaten, dvs. de er kongruente. Glassforseglinger er benyttet  
 20 mellom hver elektrolyttplate og de tilstøtende sammenkoblinger og forseglingene står  
 direkte overfor hverandre på tvers av elektrolyttplaten, dvs. de er kongruente. Denne  
 utførelse innbefatter et ikke-porøst elektrisk isolerende lag som ligger ved kanten av  
 stabelen mellom sammenkoblingene.

25 Flate stablede elektrolyttceller omfatter vekslende elektrolyttplater og sammenkoblinger  
 med pregede gasspassasjer er beskrevet i en teknisk rapport med tittelen "Thinner, More  
 Efficient Oxygen Separation Cells" av C.J. Morrissey i NASA Tech Brief, Vol. 17, nr.  
 4, emne #100, april 1993. Luft innføres i cellene gjennom aksiale grenrør som passerer  
 gjennom stabelen og som har innmating i radial strøm over katodesiden av cellene.

30 Oksygenfattig luft trekkes gjennom et sentralt plassert aksialt grenrør.  
 Oksygenproduktet fra anodesiden av cellene ledes gjennom ytterligere aksiale grener  
 som passerer gjennom stabelen ved områder som står i omkretsretningen mellom  
 grenrørene for luftmating. Anoden og katoden på hver elektrolyttplate synes å stå  
 direkte overfor hverandre over elektrolyttplaten, dvs. de er kongruente. Selv om  
 35 tetninger ikke er spesielt nevnt i teksten, gir tegningene det inntrykk at tetninger mellom  
 hver elektrolyttplate og de tilstøtende sammenkoblinger vil stå direkte overfor  
 hverandre over elektrolyttplaten, dvs. de er kongruente.

Teknikkens stand når det gjelder utformning av stablede ione-ledende elektrolytiske celler går således ut på fremgangsmåter for forsegling av anode og katodesidene av cellene for å hindre tverrforurensning av innmatet gass og produktgass. Imidlertid har  
 5 forseglingen vist seg vanskelig ved høye temperaturer og elektrokjemisk aktive tilstander som oppstår i disse systemer. Den praktiske anvendelse av ioneleder-systemer for gasseparering, uansett utformningen, krever at cellene arbeider under trykkforskjeller og/eller forskjellige gassammensetninger mellom matesidene og produktsidene på cellene og dette krever på sin side robuste gasstette forseglinger  
 10 mellom stabelkomponentene. Oppfinnelsen som beskrives i det følgende og er angitt i kravene vedrører dette behov.

#### OPPSUMMERING AV OPPFINNELSEN

15 Oppfinnelsen er en fremgangsmåte til separering av oksygen fra en oksygenholdig gass og går ut på å bringe den oksygenholdige gass i kontakt med en første flate av en flat fast elektrolytt som er i stand til å transportere oksygenioner, tilføre elektroner til den første overflate av den faste elektrolytt med en katode i elektrisk kontakt med en del av den første overflate og elektrokjemisk reduksjon av oksygenet i den oksygenholdige  
 20 gass ved å forbruke elektroner til dannelsen av oksygenioner. De resulterende oksygenioner blir transportert som en strøm gjennom den faste elektrolytt ved påtrykning av elektrisk spenning over den flate faste elektrolytt og oksyngengass blir dannet ved den andre overflate av den faste elektrolytt ved å forbruke oksygenioner og produsere elektroner. Elektronene blir ledet fra den andre overflate med en anode i  
 25 elektrisk kontakt med en del av den andre overflaten og elektronene blir ledet fra anoden med en elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass og som er i elektrisk kontakt med anoden. Oksyngengass blir samlet i et hulrom som er omgitt i det minste delvis av den andre overflate av den faste elektrolytt, den elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass og en gasstett anodeforsegling som  
 30 ligger mellom en del av den andre overflate av den faste elektrolytt og en motstående del av den elektrisk ledende sammenkobling. Oksyngengass blir trukket fra hulrommet og en oksygenfattig gass blir trukket fra berøring med den første overflate av den flate faste elektrolytt. Et anodeforsegelende potensial opprettholdes under omtrent 40 mV, fortrinnsvis med en eller flere forspenningselektroder. Minst en av  
 35 forspenningselektroder kan være en forlenget del av anoden eller kan som et alternativ være en elektrode som er adskilt fra anoden. Begge typer forspenningselektroder kan anvendes samtidig. Minst en av forspenningselektroderne er fortrinnsvis anbragt mellom

anoden og anodeforseglingen. Eventuelt behøver minst en av forspenningselektrodenes ikke være anbragt mellom anoden og anodeforseglingen.

Trykket på oksyngassen som dannes ved den andre overflate av den faste elektrolytten, kan være et annet enn trykket på den oksygenholdige gass ved den første overflate av den faste elektrolytten. I en utførelse omfatter den oksygenholdige gass luft og oksyngassen trekkes ut som et produkt under trykk med høy renhet og med et trykk som er minst 5 kPa større enn trykket på den oksygenholdige gass. Som et alternativ inneholder den oksygenholdige gass mindre enn 20,9 volum-% oksygen. I en annen utførelse omfatter den oksygenholdige gass argon og et argonprodukt som er fattig på oksygen trekkes ut etter kontakt med den oksygenholdige gass med den første overflate av den faste elektrolytt og etter at oksygenet er fjernet ved reduksjon (ionisering) og transportert over den faste elektrolytt. Argonproduktet kan dannes ved et trykk som er lik eller større enn trykket på oksyngassen i hulrommet som ligger på anodesidene av elektrolyttplaten og sammenkoblingen.

Oppfinnelsen innbefatter en elektrolyttplate for en flat elektrolytisk celle som kan brukes til separering av oksygen fra en oksygenholdig gassblanding der elektrolyttplaten har en anodeside og en katodeside og der den flate elektrolytiske celle omfatter elektrolyttplaten, en overflate på en første elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass i elektrisk kontakt med katodesiden av den elektrolytiske plate og en overflate på en andre elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass i elektrisk kontakt med anodesiden på den elektrolytiske plate. Elektrolyttplaten omfatter (a) en flat, fast elektrolytt som er i stand til å transportere oksygenioner, (b) en anode i elektrisk kontakt med en overflate av den flate faste elektrolytt, (c) en katode i elektrisk kontakt med en motstående overflate av den flate, faste elektrolytt og (d) en eller flere forspenningselektroder. En forspennings-elektrode er definert som et hvilket som helst elektrodemateriale som er i elektrisk kontakt med elektrolyttplaten, befinner seg i et område av elektrolyttplaten slik at området ikke har noe katodemateriale på sin motstående side, og er i elektrisk kontakt med den andre elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass.

Elektrolyttplaten kan ha minst en forspenningselektrode som er en forlenget del av anoden eller som alternativ, kan minst en av forspenningselektrodenes være adskilt fra anoden. Elektrolyttplaten har også en gasstett forsegling mellom katodesiden av elektrolyttplaten og overflaten av den første elektrisk ledende sammenkobling som er

ugjennomtrengelig for gass der den gasstette forsegling omfatter elektrisk isolerende materiale.

Oppfinnelsen er altså en flat, elektrolytisk celle som er egnet til separering av oksygen  
5 fra en oksygenholdig gassblanding og omfatter:

- (a) en fast elektrolyttplate som er i stand til å transportere oksygenioner der platen har en anodeside og en katodeside;
  - (b) en første elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass  
10 og har en katodeside i elektrisk kontakt med katodesiden av elektrolyttplaten;
  - (c) en andre elektrisk ledende sammenkobling som er ugjennomtrengelig for gass og har en anodeside i elektrisk kontakt med anodesiden av elektrolyttplaten;
  - (d) et første hulrom som i det minste delvis er dannet av katodesiden av elektrolyttplaten, katodesiden av den første sammenkobling og en eller flere  
15 gasstette katodeforseglinger som ligger mellom disse; og
  - (e) et andre hulrom som i det minste delvis er dannet av anodesiden av elektrolyttplaten, anodesiden av den andre sammenkobling og en eller flere gasstette anodeforseglinger som ligger mellom disse.
- 20 Hver av de ene eller flere anodeforseglinger er fullstendig forskjøvet i forhold til hver av de en eller flere katodeforseglinger på motstående sider av elektrolyttplaten slik at projeksjonen av hver anodeforsegling mot katodesiden av elektrolyttplaten ikke overlapper noen av de en eller flere katodeforseglinger.
- 25 Oppfinnelsen er også en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass og anordningen omfatter en flerhet av flate, faste elektrolyttplater som er i stand til å transportere oksygenioner der hver plate har en anodeside, en katodeside, en ytre kant og en gjennomgående åpning i det indre området av platen der anodesiden har en anode i elektrisk kontakt med platen og omgitt av et  
30 sammenhengende omkretsområde som ikke er elektrode mellom den ytre kant av platen og anoden. Anordningen omfatter en flerhet av flate gasstette elektrisk ledende sammenkoblinger som hver har en anodeside, en katodeside, en ytre kant og minst en gjennomgående åpning i platens indre. Anodesiden har et sammenhengende flatt omkretsparti nær ved den ytre kant og en eller flere gasspassasjer som er dannet ved  
35 sammenkoblede inntrykninger i anodesiden, hvilke passasjer er plassert mellom det flate omkretsparti og åpninger og er i strømningsforbindelse med denne.



Elektrolyttplatene og sammenkoblingene er stablet avvekslende for å danne en stabel med flate elektrolytiske celler som er seriekoblet elektrisk der hver celle er dannet av en elektrolyttplate, anodesiden av en første sammenkobling i elektrisk kontakt med anodesiden av elektrolyttplaten og katodesiden av en andre sammenkobling i elektrisk kontakt med katodesiden av elektrolyttplaten. En anodeforsegling er anbragt mellom og bundet til det sammenhengende omkretsparti som ikke er elektrode på anodesiden av elektrolyttplaten og det sammenhengende flate omkretsområdet som ligger ved den ytre kant av anodesiden av den første sammenkobling, som i det minste delvis danner et oksygensamlende hulrom for samling av oksyngengass som dannes på anodesiden av elektrolyttplaten. En eller flere forspenningselektroder er i elektrisk kontakt med anodesiden av hver elektrolyttplate og en ribbe for kobling til jord er utformet på anodesiden av hver sammenkobling som en sammenhengende eller avbrutt hevet rygg som omgir den ene eller flere gasspassasjer der disse er dannet av en sammenkoblet inntrykning av anodesiden av sammenkoblingen. Jordkoblingsribben er i det minste i kontakt med en av de en eller flere spenningselektroder.

Anordningen innbefatter innretninger som kan sette opp en elektrisk spenning over flerheten av flate elektrolytiske celler slik at det oppstår en elektronstrøm imellom sammenstående celler gjennom sammenkoblingene, innretninger for innføring av oksygenholdig gass i stabelen av elektrolytiske celler, innretninger for uttak av oksyngengass fra stabelen av elektrolytiske celler og innretninger for uttak av oksygenfattig gass fra stabelen av elektrolytiske celler. I det minste kan en av de en eller flere forspenningselektroder være en forlengelse av anoden eller som alternativ, kan minst en av forspenningselektrodene være adskilt fra anoden og anbragt mellom anoden og anodeforseglingen.

I denne anordning har katodesiden av hver elektrolyttplate et sammenhengende omløpende område som ikke er elektrode ved den ytre kant av platen og et annet sammenhengende område som ikke er elektrode rundt åpningen og katoden ligger mellom områdene som ikke er elektrode. Katodesiden av hver sammenkobling har et sammenhengende flatt omløpende område ved den ytre kant, et hevet sammenhengende flatt område som omgir åpningen og en eller flere gasspassasjer som er dannet i katodesiden av en flerhet av hevede områder som ligger mellom det flate omkretsparti og det flate området som omgir åpningen der de hevede områder og de hevede sammenhengende flate områder ligger i samme plan og der gasspassasjene er i strømningsforbindelse med deler av det sammenhengende flate området nær ved den ytre kant. En katodeforsegling befinner seg mellom og er bundet til det hevede

sammenhengende flate området som omgir åpningen i katodesiden av sammenkoblingen og det sammenhengende området som ikke er elektrode på katodesiden av elektrolyttplaten rundt åpningen gjennom denne, slik at det dannes et delvis lukket hulrom som den oksygenholdige gass flyter gjennom.

5

I en utførelse av anordningen er elektrisk isolerende bæremateriale anbragt mellom det sammenhengende omkretsparti av katodesiden som ikke er elektrode på hver elektrolyttplate og det sammenhengende omløpende flate parti nær ved ytterkanten av katodesiden på hver tilstøtende sammenkobling. Det isolerende bærematerialet er anbragt slik at det dannes et hulrom i hver elektrolytiske celle i det minste delvis av isolerende bæremateriale, katodesiden av elektrolyttplaten, katodesiden av en tilstøtende sammenkobling og katodeforseglingen slik at hulrommet står i strømningsforbindelse med innretningen for innføring av oksygenholdig gass i stabelen av elektrolytiske celler og innretningene for uttak av oksygenfattig gass fra stabelen av elektrolytiske celler. Åpningene i hver elektrolyttplate og hver sammenkobling danner, i tilknytning til katodeforseglingene, en aksial passasje gjennom de stablede elektrolytiske plater og sammenkoblinger og denne passasje er i strømningsforbindelse med hulrommene for samling av oksygen og denne aksiale passasje sørger for utmatning av oksygen-gass.

20

Oppfinnelsen innbefatter et materiale som er egnet til bruk som en elektrisk isolerende understøttelse mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass.

25

Materialet dannes ved brenning av en blanding som omfatter uorganisk oksydglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikktyper ved mer enn 700°C der varmeutvidelseskoeffisienten for blandingen etter brenning skiller seg fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkoblingen med mindre enn 2 mikrometer / (meter · °C). I en utførelse omfatter blandingen uorganisk oksydglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikktyper som før brenning inneholder omtrent 0,3 til omtrent 27 vekt-% av et litium aluminosilikatglass i blanding med de isolerende keramikker magnesiumoksyd (MgO) og aluminiumoksyd (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) og der vektforholdet mellom magnesiumoksyd og aluminiumoksyd i blandingen før brenning er omtrent 0,2 og omtrent 8.

35

Oppfinnelsen går også ut på en fremgangsmåte til fremstilling av et materiale som er beregnet til bruk som et elektrisk isolerende støttemateriale mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning til separering av oksygen

fra en oksydholdig gass der fremgangsmåten går ut på brenning av en blanding omfattende uorganisk oksydglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikktyper ved over 700°C for å gi et elektrisk isolerende bæremateriale som har en varmeutvidelseskoeffisient som er forskjellig fra varme-  
 5 utvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkoblingen på mindre enn omtrent 3 mikrometer/ (meter · °C). I en utførelse inneholder blandingen som omfatter det uorganiske oksydglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikker, omtrent 0,3 til omtrent 27 vekt-% av litium aluminosilikat glass i blanding med de isolerende keramikker  
 10 magnesiumoksyd (MgO) og aluminiumoksyd (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) med vektforholdet for magnesiumoksyd til aluminiumoksyd i blandingen før brenning er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8.

En annen utførelse av oppfinnelsen er et materiale som er egnet til bruk som en elektrisk  
 15 isolerende bærer mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass, hvilket materiale er laget ved sintring av en blanding omfattende en eller flere elektrisk isolerende keramikker for å gi et elektrisk isolerende bæremateriale med en varme-  
 utvidelseskoeffisient som skiller seg fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten  
 20 eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkobling med mindre enn omtrent 1 mikrometer/(meter · °C). En representativ blanding av isolerende keramikker omfatter magnesiumoksyd (MgO) og aluminiumoksyd (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) med en slik sammensetning at vektforholdet for magnesiumoksyd til aluminiumoksyd i blandingen før sintring er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8.

25 En alternativ utførelse er en fremgangsmåte til fremstilling av et materiale som er egnet til bruk som en elektrisk isolerende bærer mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass der fremgangsmåten omfatter sintring av en blanding av en eller  
 30 flere isolerende keramikker for å gi et elektrisk isolerende bæremateriale med en varmeutvidelseskoeffisient som skiller seg fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkoblingen med mindre enn 1 mikrometer/(meter · °C). Blanding før sintring kan omfatte magnesiumoksyd (MgO) og aluminiumoksyd (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) som har en slik sammensetning at vektforholdet mellom  
 35 magnesiumoksyd og aluminiumoksyd i blandingen før brenning er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8. Fremgangsmåten innbefatter eventuelt binding av det elektrolytisk isolerende bærematerialet til elektrolytten ved samtidig brenning av det elektrolytisk

isolerende bærematerialet med elektrolytten ved temperaturer som er tilstrekkelig til å binde den isolerende bærer direkte til elektrolytten. Som et alternativ kan det elektrisk isolerende bærematerialet bindes til elektrolytten og til sammenkoblingen ved å anbringe uorganisk oksydglass eller glasskeramikk mellom den isolerende bærer og elektrolytten, anbringe uorganisk oksydglass eller glasskeramikk mellom den isolerende bærer og sammenkoblingen og brenning ved en temperatur som er tilstrekkelig til å binde den isolerende bærer til både elektrolytten og sammenkoblingen. Det uorganiske oksydglass eller glasskeramikk kan være et litium aluminosilikatglass.

## KORT BESKRIVELSE AV TEGNINGENE

Fig. 1 viser katodesiden av en elektrolyttplate ifølge foreliggende oppfinnelse sett ovenfra.

Fig. 2 viser anodesiden av en elektrolyttplate sett ovenfra.

Fig. 3 viser anodesiden av en alternativ elektrolyttplate sett ovenfra.

Fig. 4 viser katodesiden av en sammenkobling sett ovenfra.

Fig. 5 viser anodesiden av en sammenkobling sett ovenfra.

Fig. 6A og 6B viser snitt som innbefatter enkle elektrolytiske celler med deler trukket fra hverandre.

Fig. 7A og 7B viser snitt gjennom flere elektrolytiske celler i serie.

Fig. 8 viser en fjerdedel av den isolerende bærer, elektrode og katodeforsegling for en samlet stabel.

Fig. 9 er et fullstendig snitt gjennom en isolerende bærer, elektrode og katodeforsegling for en samlet stabel.

Fig. 10 viser skjematisk isometrisk en komplett elektrolyttstabel.

Fig. 11 er en kurve for strømningseffektivitet i forhold til driftstid for eksemplene 2 og 3 i beskrivelsen.

Fig. 12 er en kurve for strømmingseffektivitet i forhold til driftstid for eksemplene 3 og 4 i beskrivelsen.

- 5 Fig. 13 er en kurve som viser driftstid i forhold til påtrykt spenning for Eksempel 5 i beskrivelsen.

Fig. 14 er en kurve som viser forseglingspotensiale i forhold til bredden på forspenningselektrode for Eksempel 6 i beskrivelsen.

10

## DETALJERT BESKRIVELSE AV OPPFINNELSEN

- Separeringsanordninger basert på oksygen ioneledende faste elektrolytter har praktiske anvendelser i produksjonen av oksygen med høy renhet fra luft og fjernelse av rest-  
 15 oksygen fra inerte gasser så som argon eller nitrogen. I begge anvendelser blir den faste elektrolytt drevet med en forskjell i gasstrykk og/eller gassammensetning mellom mate- (katode) side og produkt eller permeat (anode) side av elektrolytten. Styrken på komponentene i en slik separeringsanordning og stabiliteten i de gasstette forseglinger som kreves mellom disse komponenter må være tilstrekkelig til å tåle praktiske trykk-  
 20 og/eller sammensetningsforskjeller i løpet av anordningens økonomiske levetid.

- Separeringsanordninger basert på oksygenion-ledende faste elektrolytter kan konstrueres i rørform, som flat plate, bikakeform eller som monolitt. Utformningen av den flate plate hvori en rekke flate elektrolyttceller er stablet for å arbeide i elektrisk  
 25 serie, er å foretrekke ved mange anvendelser på grunn av enkelte sammensetninger, kostnadseffektivitet og kompakte dimensjoner. Den flate plateform må utføres med den rette komponentstyrke og sikker forsegling for å kunne arbeide ved trykkforskjell og/eller forskjellig gassammensetning mellom mate- og produktgasstrømmene ved bibehold av kravene til renhet for produktgasstrømmen. Foreliggende oppfinnelse gjør  
 30 bruk av en stabelutformning med flate plater og en fremgangsmåte til drift som tilfredsstiller disse krav.

- Det har tidligere oppstått vanskeligheter med vedlikehold av slike forseglinger slik det er omhandlet i de angitte referanser for teknikkens stand som er oppsummert ovenfor.  
 35 Svikt i anodeforsegling finner lett sted i stabelutformninger der forseglingene på anode- og katodesider av elektrolyttplaten står direkte overfor hverandre. Denne svikt ble observert som en lagdeling ved grensesnittet mellom forseglingsmaterialet og

anodesiden av elektrolyttplaten. Det antas at denne forseglingssvikt kan være resultatet av spredt eller anodisk reststrøm som passerer gjennom forseglingen.

I foreliggende oppfinnelse vil flere forbedringer i stabelutformningen redusere eller  
5    oppheve anodeforseglingssvikt. En av disse forbedringer er bruk av en eller flere  
forspenningselektroder i kontakt med hver elektrolyttplate der elektrodene modifiserer  
eller forspenner elektrolyttpotensialet i forseglingsområdet slik at strømmen som flyter  
gjennom anodeforseglingen blir minst mulig. En forspenningselektrode kan være en  
forlengelse av anoden ut over kanten av det projiserte området av katoden på den  
10    motstående side av elektrolyttplaten. Som et alternativ kan en separat forspennings-  
elektrode eller jordkoblet ring anbringes på elektrolyttplaten mellom anoden og anode-  
forseglingen. En forlenget anode og en egen jordkoblet ring kan benyttes i kombinasjon  
om det ønskes. Uttrykket forspenningselektrode slik det her benyttes, skal bety et  
hvilket som helst elektrodemateriale som er i elektrisk kontakt med elektrolyttplaten, er  
15    plassert på et område av elektrolyttplaten slik at området ikke har noe katodemateriale  
på den motstående side, og holdes på et potensial som er større enn omtrent -40 mV i  
forhold til anodesiden på sammenkoblingen. Dette potensial opprettholdes fortrinnsvis  
ved at det dannes elektrisk kontakt mellom forspenningselektroden og anodesidens  
sammenkobling. Projeksjonen av et område på anodesiden av platen som er dekket av  
20    forspenningselektroden på katodesiden av elektrolyttplaten, vil ikke komme i berøring  
med eller overlappet katodematerialet. Som regel er forspenningselektroden eller  
elektrodene plassert på anodesiden av elektrolyttplaten. Om det ønskes kan en  
forspenningselektrode anbringes på katodesiden av elektrolyttplaten hvis en slik  
forspenningselektrode (a) ikke er i elektrisk kontakt med katoden, (b) ikke er i elektrisk  
25    kontakt med sammenkoblingens kontaktside og (c) er i elektrisk kontakt med  
sammenkoblingens anodeside. I det minste en del av en slik forspenningselektrode på  
katodesiden står fortrinnsvis direkte overfor anodeforseglingen.

En annen forbedring er den radiale forskyvning av anode- og katodeforseglingene slik at  
30    forseglingene ikke overlapper på motstående side av hver elektrolyttplate. Dette trekk  
som her er betegnet som forskjøvede forseglinger, krever en spesiell celle-geometri som  
beskrevet nedenfor. Det har vist seg at en kombinasjon av forskjøvede forseglinger og  
forspenningselektroder er særlig effektiv når det gjelder å redusere eller eliminere svikt i  
anodeforsegling ved styring av potentialet over anodeforseglingene på mindre enn 40  
35    mV. Dette reduserer reststrømmen som flyter gjennom forseglingen.

- Den plane eller flate plateutførelse ifølge foreliggende oppfinnelse der det benyttes avvekslende elektrolyttplater og elektrisk ledende sammenkoblinger som danner enkeltstående elektrokjemiske celler der disse arbeider i elektrisk seriekobling og isolerer gass som innmates og gass som produseres som beskrevet ovenfor. Nøkkel-
- 5 komponenten for hver elektrokjemisk celle er elektrolyttplaten og tilhørende elektroder som fordeler det elektriske potensial og strøm av elektroner over platens overflate. Elektrolyttplatene bør være så tynne som mulig, men allikevel ha tilstrekkelig styrke til å arbeide under de nødvendige trykkforskjeller.
- 10 Elektrolyttplatene er flate og er stablet i aksialretningen. Formen på platene i radialretningen kan være sirkulær, kvadratisk, rektangulær eller en hvilken som helst annen plan, geometrisk form. Den foretrukne elektrolyttplate ifølge foreliggende oppfinnelse er hovedsakelig kvadratisk med avrundete hjørner som vist på fig. 1 som er mate- eller katodesiden av platen. Det elektriske materialet som er katodematerialet i
- 15 katoden, er påført på midtpartiet av elektrolyttplaten slik at det blir tilbake sammenhengende områder 3 og 5 som ikke er elektroder. Området 5 som ikke er elektrode, omgir en åpning 7 som stikker gjennom platen. Uttrykket området som ikke er elektrode betyr et hvilket som helst område av elektrolyttplaten der det ikke er påført noe elektrodemateriale. Elektrolyttmaterialet er en flerkomponents ione-ledende
- 20 metalloksyd omfattende oksyd av minst to forskjellige metaller eller en blanding av minst to forskjellige metalloksyder der flerkomponent metalloksydet oppviser ione-ledeevne ved anordningens arbeidstemperatur som som regel er mer enn 500°C. En fast oksygen ione-ledende elektrolytt som er kjent på dette området kan benyttes. Representative elektrolytter innbefatter yttriumstabiliserte zirkoniumoksyd, stronsium-
- 25 dopet seriumoksyd, gadolinia-dopet seriumoksyd og bismut vanadiumoksyd. Katodematerialet er laget av et oksydasjonsfast metall, en legering eller et flerkomponent blandet ledende oksyd. Særlig hensiktsmessige elektrodematerialer innbefatter lantan, strontium cobaltitt (LSCO)  $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{CoO}_{3-z}$ , der x ligger i området fra 0,2 til 1 og z er et antall som gjør forbindelsens ladning nøytral. LSCO kan benyttes
- 30 med et mellomliggende belegg av lantan strontium cobaltitt og sølv eller sølv-palladium legering som påføres elektrodeflaten. Belegget kan påføres som en pasta og sintres eller kan påføres ved sjablongtrykk eller tilsvarende fremgangsmåte ved påsprøyting eller ved andre teknikker som er velkjent på området. Tykkelsen på katoden er omtrent 0,1 til 100 mikron. Representative dimensjoner for elektrolyttplaten er 5 til 20 cm i bredde
- 35 eller diameter og 0,01 til 0,065 cm i tykkelse.

Anodesiden av elektrolyttplaten er vist på fig. 2. Elektrodematerialet 9 er påført rundt åpningen 7 og er omgitt av et sammenhengende område 11 som ikke er elektrode og har en bredde på  $d_2$ . Bredden  $d_2$  er mindre enn bredden  $d_1$  på katodesiden på fig. 1 og den ytterligere bredde eller utvidelse av elektroden 9 på anodesiden er definert som en  
 5 forspenningselektrode som forspenner potensialet over anodeforseglingen (beskrevet nedenfor) og reduserer strømmen som flyter gjennom forseglingen. Som regel er forskjellen mellom  $d_1$  og  $d_2$  omtrent 0,1 til 2 cm og danner en utvidet anode som tjener som forspenningselektrode. En ytterligere definisjon av den utvidede anode er en del av elektrodematerialet som er forlengelse av og i elektrisk kontakt med anoden og ikke  
 10 kongruent med katoden eller strekker seg likt med denne på motstående side av elektrolyttplaten.

En alternativ anodeside av elektrolyttplaten er vist sett ovenfra på fig. 3.

Elektrodematerialet 13 er påført elektrolyttplaten og har samme form og i det minste  
 15 samme omkretsdimensjoner som elektrodematerialet 1 på fig. 1. En adskilt forspenningselektrode 15 er påført mellom elektroden 13 og det ytre parti av området 11 som ikke er elektrode. Forspenningselektroden 15 er også kjent som jordkoblingsring som er definert som en forspenningselektrode som ikke er i direkte kontakt med anoden. Eventuelt kan elektroden 13 være noe større enn elektroden 1 på fig. 1. Åpningen 7  
 20 svarer til åpningen 7 på fig. 1. Bredden  $d_3$  svarer til bredden  $d_2$  på fig. 2 og bredden  $d_3$  er mindre enn bredden  $d_1$  på katodesiden på fig. 1. Anoden benytter fortrinnsvis elektrisk ledende materiale svarende til katoden som er beskrevet ovenfor og forspenningselektroden som er beskrevet nedenfor selv om forskjellige elektrisk ledende materialer kan benyttes for enhver av disse tre elektrodetyper.

25 Fordelingen av gass over katodesiden av elektrolyttplaten, uttak av oksygen fra platens anodeside og transporten av elektroner fra anodesiden av en elektrolyttplate til katodesiden av en tilstøtende elektrolyttplate, blir befordret med flate sammenkoblinger som har stort sett samme ytre dimensjon som elektrolyttplaten. Sammenkoblingene er  
 30 laget av et oksydasjonsfast materiale som er ugjennomtrengelig for gass og har en varmeutvidelseskoeffisient som er sammenlignbar med koeffisienten for elektrolytten, høy elektronisk ledningsevne og lav ionisk ledningsevne. Materialet kan være et flerkomponents, elektrisk ledende flerkomponents metalloksyd, et metall eller en metallegering eller en blanding av de to. Egnede elektronisk ledende oksyder  
 35 innbefatter lantan strontium kromitt, lantan kalsium manganitt og lantan kalsium kromitt. Lantan strontium manganitt (LSM),  $\text{La}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$  er et foretrukket materiale for sammenkoblingene.



Katodesiden av en sammenkobling er vist sett ovenfra på fig. 4 der sammenkoblingen har et sammenhengende stort sett flatt omkretsområde 17 og en åpning 19 til motstående side av sammenkoblingen. Sammenkoblingen har stort sett samme form og størrelse  
 5 som elektrolyttplatene på fig. 1 - 3. Et sammenhengende stort sett flatt område 21 omgir åpningen 19. Åpningen 19 har som regel samme eller tilsvarende diameter som åpningen 7 i elektrolyttplatene på fig. 1 - 3. En flerhet av hevede partier 23 som i denne utførelse er betegnet som avkortede kjegleformede boss eller som kulesegmenter med flate topper som også kan beskrives som tapper, er anbragt mellom de flate områder 17  
 10 og 21. De sammenhengende nedtrykkede eller ikke hevede partier mellom de hevede partier, vil sammen med en tilstøtende elektrolyttplate danne et hulrom som er i strømningsforbindelse med et flatt omkretsområde 17 som beskrevet nedenfor. Alternativer til de hevede områder 23 kan benyttes, som f.eks. ribber, forhøyede rektangulære eller trekantede områder og lignende der disse har hovedsakelig samme  
 15 funksjon som de hevede partier 23. Toppene på det hevede partiet 23 og det flate området 21 ligger hovedsakelig i samme plan og dette plan ligger høyere enn det plan som dannes av det flate området 17.

Den motstående side eller anodesiden av sammenkoblingen er vist sett ovenfra på fig. 5.  
 20 Et sammenhengende stort sett flatt område 25 ligger rundt omkretsen av sammenkoblingen og en flerhet av hevede partier 27 som i denne utførelse er betegnet som avkortet kjegleformede bånd eller kulesegmenter med flate topper som også kan beskrives som tapper, er anbragt mellom det hovedsakelig flate området 25 og åpningen 19. De sammenhengende nedtrykte eller ikke hevede partier mellom de hevede partier,  
 25 vil sammen med en tilstøtende elektrolyttplate danne et hulrom eller innkoblede hulrom i strømningsforbindelse med åpningen 19 som beskrevet ytterligere i det følgende. Alternativer til de hevede partier 27 kan benyttes som f.eks. ribber, kanaler, o.l. som har samme funksjon som de hevede partier 27. En sammenhengende ribbe 28 til  
 30 jordkobling omgir de hevede partier og har elektrisk kontakt med forspenningselektroden som beskrevet i det følgende. Toppene på de hevede partier 27, toppen på jordkoblingsribben 28 og det flate området 25 ligger hovedsakelig i samme plan.

En enkel elektrolytisk celle er dannet av en elektrolyttplate med en anode og en katode  
 35 og tilstøtende flater av to sammenkoblinger som er forbundet med passende gasstette anode- og katodeforseglinger og elektriske forbindelser. Et snitt gjennom en enkel elektrolytisk celle er vist på fig. 6A med komponenter trukket fra hverandre og ikke

nødvendigvis i riktig skala. Elektrolyttplaten 29 som tilsvarer snittet A-A på fig. 1 og 2, har en katodedel 31 og en anodedel 33 påført på katode- og anodesider. Anodedelen 33 strekker seg lenger utad i radialretningen enn katodedelen 31 og denne forlengede del danner forspenningsselektrodedelen 34. Forspenningsselektrodedelen 34 er en del av den komplette forspenningsselektrode som dannes med forlengelsen av anoden 9 på Fig. 2 forbi katoden 1 på Fig. 1 i radial retning utad. Denne forlengelse er definert slik at bredden  $d_2$  på Fig. 2 er mindre enn bredden  $d_1$  på Fig. 1. Ribben 42 for kobling til jord har elektrisk kontakt med forspenningsselektroden 34 når stabelen er satt sammen. Forholdet  $L/t$  er fortrinnsvis mindre enn omtrent 10, der  $L$  er bredden på forspenningsselektrodedelen 34 på Fig. 6a, dvs. forskjellen mellom  $d_1$  og bredden  $d_2$  og  $t$  er tykkelsen på elektrolyttplaten 29. Forholdet  $L/t$  er valgt slik at potensialet over anodeforseglingen 39, som er betegnet som anodeforseglingspotensiale, er mindre enn omtrent 40 mV og fortrinnsvis mindre enn 25 mV.

Anodeforseglingspotensialet er definert som den elektriske potensialforskjell målt mellom en elektrisk kontakt på sammenkoblingen, som ligger ved anodesiden av elektrolytten og en referanseelektrode som befinner seg på elektrolytten i nærheten av anodeforseglingen. Ytterligere spesifikasjoner som angår anodeforseglingspotensialet innbefatter det følgende. Referanseelektroden befinner seg på den overflate av katodesiden på elektrolyttplaten som er direkte overfor anodeforseglingen, der et område for elektrisk kontakt ikke stikker forbi det område som er definert som en projeksjon av anodeforseglingen på katodesiden av elektrolyttplaten. Den elektriske kontakt til sammenkoblingen som er i direkte kontakt med anodeforseglingen er utført på den overflate av katodesiden som står direkte overfor anodeforseglingen. Dette område med elektrisk kontakt stikker ikke utenfor det område som defineres som en projeksjon av anodeforseglingen på katodesiden av sammenkoblingen. For eksempel på Fig. 6A, blir anodeforseglingspotensialet målt mellom et punkt 46 på elektrolyttplaten 29 og et punkt 44 på sammenkoblingen 37. Referanseelektroden er av samme type (sammensetning, morfologi og fremstillingsmåte) som anoden. I tillegg skiller oksygenets absolutte partiale gasstrykk som er i kontakt med referanseelektroden seg fra oksygenets absolutte partiale gasstrykk som er i kontakt med anoden med ikke mer enn 5% for oksygenets absolutte partiale gasstrykk som er i kontakt med anoden. Potensialet måles under stabile tilstander uten svingninger ved cellens normale arbeidstemperatur, som som regel ligger mellom 600°C og 850°C, og med den normale driftsstrøm som flyter gjennom elektrolytten fra anode til katode på som regel 50-1500 mA/cm<sup>2</sup>.

Plasseringen av sammenkoblingens kontakt og referanseelektrode er slik at den absolutte verdi for null-strøm forseglingspotensialet blir minst mulig, og den minste verdi bør fortrinnsvis være mindre enn omtrent 0,1 mV. Null-strøms forseglingspotensialet er definert som det potensial som måles mellom

5 sammenkoblingskontakten og referanseelektroden under samme betingelser som målingen av forseglingspotensialet, men med null stabil strøm som flyter gjennom cellen. Et null-strøm potensial av denne art fremkommer for eksempel ved temperaturgradienter i elektrolytten, og dermed blir null-strømpotensialet redusert ved å anbringe referanseelektroden så nær som mulig til sammenkoblingskontakten. Hvis den

10 absolutte verdi på nullstrømforseglingspotensialet ikke reduseres til mindre enn 0,1 mV ved omhyggelig plassering av referanseelektroden, blir forseglingspotensialet korrigert ved å subtrahere null-strøms forseglingspotensialet fra forseglingspotensialet med redefinering av forseglingspotensialet som denne forskjell.

15 Sammenkoblingsdelene 35 og 37 på Fig. 6A tilsvarer snittet C-C på Figurene 4 og 5. Anodeforseglingen 39 er anbragt mellom sammenhengende område 41 som ikke er elektroder (svarende til det sammenhengende område 11 som ikke er elektrode på Fig. 2) og det sammenhengende stort sett flate område 43 (svarende til det sammenhengende hovedsakelig flate område 25 på Fig. 5). Katodeforseglingen 45 ligger mellom det

20 sammenhengende område 47 som ikke er elektrode (svarende til det sammenhengende område 5 som ikke er elektrode på Fig. 1) og det sammenhengende generelt flate område 49 (svarende til det sammenhengende generelt flate område 21 på Fig. 4). Et foretrukket materiale for forseglingene 39 og 45 er en glasskeramikk som er avledet fra litiumaluminosilikat (LAS) glass, som er et kjent materiale på dette område til bruk i

25 forseglinger som beskrevet for eksempel i en artikkel av T. J. Headly og R. E. Loehman med tittelen "Crystallization of a Glass-Ceramic by Epitaxial Growth" in Journal of the American Ceramic Society, vol. 67, sidene 620-625, 1984.

Anodeforseglingen 39 og katodeforseglingen 45 danner gasstette forseglinger mellom

30 de respektive områder av elektrolyttplate og sammenkobling når stabelen settes sammen som beskrevet nedenfor. De gasstette forseglinger opprettholder renheten på produktgassen og hindrer tap av produkt og hindrer også eller reduserer blanding av innmatningsstrømmer og produktstrømmer. Forseglingene hindrer eller reduserer gassblanding på grunn av trykkforskjellen og/eller forskjellen i gassammensetning

35 mellom matestrømmer, permeatstrømmer og ikke-permeatstrømmer. De gasstette forseglinger tjener også til å binde elektrolyttplatene og sammenkoblingene sammen i stabelen som vist nedenfor. Forseglingene kan brennes samtidig og bindes direkte til

elektrolyttplatene og sammenkoblingene, eller som alternativ kan et eller flere ytterligere samtidig brente materialer benyttes.

Eventuelt blir en elektrisk isolerende bærer anbragt mellom katodesiden på elektrolyttplaten 29 og katodesiden på sammenkoblingen 35, og en del av denne bærer er betegnet som bæreren 51. Denne bærer opphever skadelige påkjenninger på elektrolyttplaten 29 når gasstrykket på anodesiden av den elektrolytiske celle er større enn gasstrykket på katodesiden av cellen. Bæreren 51 kan, men behøver ikke, være gasstett, og er ikke påført sammenhengende, slik det forklares mer i detalj nedenfor.

På Fig. 6B er det vist et snitt av en alternativ enkel elektrolytisk celle med komponentene trukket fra hverandre. Komponentene for denne alternative elektrolytiske celle er identiske med de som er vist på Fig. 6A, med unntak av det elektrodemateriale som er påført anodesiden av elektrolyttplaten 52. Anodedelen 53 har en mindre forlengelse i retning radialet utad enn anodedelen 33 på Fig. 6A, og den separate forspenningselektrodedel 55 er påført på anodesiden av elektrolyttplaten 52. Forspenningselektrodedelen 55 er en del av forspenningselektroden 15 på Fig. 3. Ribben 56 for kobling til jord har elektrisk kontakt med forspenningselektrodedelen 55 når stabelen blir stilt opp. Denne jordkoblingsribbe er som regel sammenhengende og har kontinuerlig kontakt med forspenningselektroden, men kan eventuelt være avbrutt, dvs. dannet som en rekke hevede partier anordnet i et sirkulært mønster som er i elektrisk kontakt med forspenningselektroden.

En flerhet av elementene som er beskrevet på Fig. 6A settes sammen ved å anbringe avvekslende elektrolyttplater og sammenkoblinger i en stabel, og stabelen brennes for å danne en flerhet av elektrolytiske celler som står i serie, der tre av disse er vist på Fig. 7A. Under arbeidet med å sette sammen hver celle blir et elektrisk ledende materiale påført overflatene på de hevede partier på hver sammenkobling som vist ved elementene 23 på Fig. 4 og 27 på Fig. 5. Når stabelen blir brent, bindes dette ledende materiale til de hevede partier på sammenkoblingene og til elektrodene på hver elektrolyttplate. Det ledende materiale er vist på Fig. 7 som tilpassede lag 57 mellom sammenkoblingsdelen 59 og katoden på elektrolyttplaten 61, og sammenpassende lag 63 som ligger mellom sammenkoblingsdel 65 og anoden på elektrolyttplaten 61. Disse tilpassede lag danner elektriske forbindelser mellom elektrodene og tilstøtende sammenkobling og gir også mekanisk støtte for elektrolyttplaten. Det ledende materiale er fortrinnsvis sølv som først blir påført som en væske før brenning.

I den alternative utførelse som er beskrevet ovenfor blir en flerhet av elementene som er beskrevet på Fig. 6B satt sammen i en stabel og brent for å danne en samling på mange elektrolytiske elementer i serie, der tre av disse er vist på Fig. 7B. Cellene på Fig. 7B er identiske med cellene på Fig. 7A, bortsett fra at forspenningselektroderne er ulike. På

5 Fig. 7A er forspenningselektroderne 67 radiale forlengelser av anodene på de respektive elektrolyttplater der hver anode strekker seg radially forbi kanten av anoden på den motstående side av elektrolyttplaten. Dette er beskrevet tidligere i forbindelse med Figurene 1 og 2 der forspenningselektroden er anodeforlengelsen som har en bredde lik forskjellen mellom bredde  $d_1$  og bredde  $d_2$ . På Fig. 7B er de enkeltvise

10 forspenningselektrodedeler 69 anbragt mellom hver elektrolyttplate og tilstøtende sammenkoblinger. Den komplette forspenningselektrode for dette alternativ er vist som element 15 på Fig. 3, der bredden  $d_3$  er mindre enn bredden  $d_1$  på Fig. 1.

Et foretrukket trekk ved denne utførelse av foreliggende oppfinnelse er bruken av

15 forspenningselektroder som reduserer eller eliminerer svikt i anodeforsegling ved å redusere det elektriske potensial over anodeforseglingene til en verdi som er betydelig lavere enn 40mV. Et annet trekk er at hver anodeforsegling er helt forskjøvet på elektrolyttplaten i forhold til den tilsvarende katodeforsegling. Uttrykket forskjøvet forsegling er definert som det geometriske forseglingsmønster der projeksjon av et

20 hvilket som helst anodeforseglingsparti på katodesiden av elektrolyttplaten ikke berører eller overlapper noen katodeforsegling. Dette er vist på Fig. 6A der anodeforseglingsdelen 39 er anbragt ved den ytre omkrets av elektrolyttplaten mens katodeforseglingsdelen 45 er anbragt ved den sentrale åpning i platen. Kombinasjonen av forspenningselektroder og forskjøvede forseglinger slik det benyttes i foreliggende

25 oppfinnelse er særlig effektiv når det gjelder å motvirke svikt i anodeforseglingen.

Driften av de flate elektrolytiske celler som er beskrevet ovenfor kan kreve at trykket på oksygenproduktet er høyere enn trykket på den oksygenholdige mategass, slik at cellene arbeider på en oksygenpumpende måte. Denne drift kan føre til en betydelig mekanisk

30 påkjenning på det ytre område av elektrolyttplaten. Som beskrevet tidligere, er dette problem motvirket ved bruk av en elektrisk isolerende bærer 51 som er plassert mellom katodesiden av elektrolyttplaten 29 og sammenkoblingen 35 (Fig. 6A). Denne elektrisk ledende bærer reduserer mulig skadelige påkjenninger på elektrolyttplaten 29 når gasstrykket på anodesiden av den elektrolytiske celle er større enn gasstrykket på cellens

35 katodeside. Flere bærere er vist på Fig. 7A som bærere 71 og på Fig. 7B som bærere 73.

Det elektrisk ledende bæremateriale bør ha en varmeutvidelseskoeffisient som er stort sett lik varmeutvidelseskoeffisienten for det tilstøtende elektrolyttmateriale eller for det tilstøtende sammenkoblingsmateriale. Stort sett lik betyr at

varmeutvidelseskoeffisientene for den isolerende bærer og det tilstøtende materiale over  
 5 temperaturområdet fra omtrent 20°C til omtrent 750°C er forskjellig med mindre enn omtrent 2 mikrometer / (meter · °C), fortrinnsvis med mindre enn 1 mikrometer / (meter · °C), og særlig fordelaktig med mindre enn 0,5 mikrometer / (meter · °C). Isolerende bæremateriale som har lavere verdier for Youngs modul kan tåle større forskjeller i varmeutvidelseskoeffisient sammenlignet med elektrolyttmaterialene og

10 sammenkoblingsmaterialene, mens isolerende bærematerialer med høyere Youngs modul verdier kan tåle mindre forskjeller i varmeutvidelseskoeffisient. Den isolerende bærer dannes ved bruk av en eller flere elektrisk isolerende keramikker som beskrevet i det følgende. En elektrisk isolerende keramikk er her definert som en hvilken som helst elektrisk ikke-ledende keramikk som ikke tillater passasje av elektrisk strøm når  
 15 keramikken anbringes i et elektrisk felt (se Modern Ceramic Engineering, D. W. Richerson, 2nd Edition, Marcel Dekker, Inc., New York, side 228). Blandinger av slike keramikker er valgt slik at de får høy elektrisk motstand og får varmeutvidelseskoeffisienter lik koeffisientene for materialene i elektrolytten og sammenkoblingene. Representative keramikker til bruk som isolerende bærer  
 20 innbefatter, men er ikke begrenset til, oksidene av Mg, Al, Si, Yb, Ca, Be, Sr, Nd, Sm, Er, Eu, Sc, La, Gd, Dy og Tm.

Den isolerende bærer kan fremstilles på flere forskjellige måter. I den første av disse måter lages den isolerende bærer ved hjelp av en blanding av uorganiske oksidglass  
 25 eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikker i et organisk middel eller en bærer for å danne en væske, påføring av væsken på en sammenkobling eller elektrolyttplaten, og brenning ved høyere temperatur enn 500°C. Brenningstemperaturen skal fortrinnsvis nærme seg eller nå smeltetemperaturen for glass, som som regel ligger i temperaturområdet fra omtrent 800° til omtrent 1000°C.  
 30 Den foretrukne varmeutvidelseskoeffisient for bærematerialet etter brenning er mellom omtrent 9 og omtrent 15 mikrometer / (meter · °C).

En typisk væskesammensetning er 70 vekt-% fast stoff og 30 vekt-% flytende organisk bærer, selv om også andre blandinger kan benyttes etter behov. Et foretrukket område  
 35 for blandingen av den faste del i denne før brenning (med fradrag av den organiske bærer) inneholder omtrent 0,3 til omtrent 27 vekt-% av et litiumaluminosilikatglass der resten er isolerende keramisk magnesiumoksid (MgO) og aluminiumoksid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>).

Vektforholdet mellom magnesiumoksid og aluminiumoksid i blandingen før brenning velges slik at det ligger mellom omtrent 0,2 og omtrent 8 for å gi den foretrukne varmeutvidelseskoeffisient for det isolerende bærematerialet. I tillegg er mengden av glass valgt slik at den endelige monterte isolerende bærer etter brenning er elektrisk isolerende.

Ved en annen fremgangsmåte formes en blanding av elektrisk isolerende keramikker til en ønsket form og sintres for å danne en elektrisk isolerende bærer. Denne sintrede elektrisk isolerende bærer er bundet til elektrolytten og sammenkoblingen ved å anbringe uorganisk oksidglass eller glasskeramikk mellom den isolerende bærer og elektrolytten, anbringe uorganisk oksidglass eller glasskeramikk mellom den isolerende bærer og sammenkoblingen og ved brenning av en temperatur som er tilstrekkelig til å binde den isolerende bærer til både elektrolytten og til sammenkoblingen. Det uorganiske oksidglass eller glasskeramikk er fortrinnsvis et litiumaluminosilikatglass. Som et alternativ kan den sintrede elektriske isolerende bærer bindes til elektrolytten ved samtidig brenning ved temperaturer som er tilstrekkelige til å binde den isolerende bærer direkte til elektrolytten uten bruk av uorganisk umetallisk glass.

Den isolerende bærer er videre beskrevet på Fig. 8, som tilsvarende snittet D-D på Figurene 7A og 7B. Den isolerende bærer påføres med mellomrom slik at en del 75 danner en sammenhengende bærer og ytterligere deler 77 danner enkeltvis bærere som er skilt fra hverandre med åpne mellomrom 79. Dette er vist tydeligere på Fig. 9 som er en utvidelse av snittet D-D til et tilsvarende fullt snitt gjennom den samlede stabel på samme aksiale sted. De isolerende bæredeler 81 og 83 er sammenhengende på motstående sider av stabelen, mens bæredelene 85 og 87 er avbrutt på motstående sider av stabelen. Åpningene 89 og 91 tillater tverrstrøm av innmatningsgass gjennom stabelen som beskrevet mer i detalj nedenfor, slik at oksygenholdig mategass strømmer gjennom åpningene 89 mens oksygenfattig gass slipper ut fra stabelen gjennom åpningene 91. Snittet på Fig. 9 viser også katoden 93 og katodeforseglingen 95 som omgir den sentrale åpning 97.

Den ferdige anordning og driften av den elektrolytiske celledstabel er vist skjematisk og isometrisk på Fig. 10 som ikke er i noen bestemt målestokk. Celledstabelen er dannet av en rekke med avvekslende elektrolyttplater 95 med tilhørende anoder og katoder (ikke vist), sammenkoblinger 97 og isolerende bæremateriale 99, med negativ endeplate 101 og positiv endeplate 103. Positive og negative elektriske forbindelser fører likestrøm til stabelen og denne arbeider med omtrent 50 til 700 mV per celle.

Oksygenholdig mategass flyter inn på en side av stabelen som vist, flyter videre gjennom katodesidene av cellene som en krysstrøm, og den oksygenfattige gass kommer ut fra stabelens motstående side. De isolerende bærere på motstående sider av stabelen retter gass som en krysstrøm som forklart tidligere. En snitt gjennom stabelen viser den radiale strøm av oksygenproduktgass over anodesiden av en sammenkobling mot den sentrale åpning 109. De sentrale åpninger gjennom elektrolyttplatene og sammenkoblingene sammen med katodeforseglingene som tidligere er beskrevet danner en sentral ledning for gasstrøm i forbindelse med anodesiden av hver celle. Den sentrale ledning er forbundet med en tappeledning 111 som på sin side er forbundet med en gasstett forsegling (ikke vist) til bunnplaten eller den positive endeplate 103. Som et alternativ kunne en ledning for tapping av oksygen være forbundet med en negativ endeplate 101 (ikke vist). Om det ønskes, kan oksygenproduktet tappes fra begge ender av stabelen (ikke vist).

Stabelen kan drives på minst to alternative måter. På den første måte er mategassen luft og produktet er oksygen med høy renhet på minst 99,5 volum-% oksygen som trekkes ut gjennom ledningen 111. Mateluften blir som regel innført med et trykk som er noe over atmosfæretrykk og tilstrekkelig til å sette opp en tilfredsstillende luftstrøm gjennom stabelen. Som regel blir oksygenet fremstilt kontinuerlig med et trykk på minst 5 kPa over matetrykket, noe som er mulig ved anvendelse av de forskjøvede forseglinger, forspenningselektroder og isolerende bærere som tidligere beskrevet. Stabelen drives ved en temperatur over 500°C.

Ved en annen driftsmåte er mategassen en inertgass som for eksempel nitrogen eller argon som inneholder en lav konsentrasjon av oksygen som urenheter. Den elektrolytiske cellestabel drives for å fjerne en hoveddel av oksygenet slik at den oksygenfattige gass strømmer ut fra katodesidene av cellene og da inneholder som regel mindre enn 100 ppbv til mindre enn omtrent 10 volum-% oksygen. Strømmen av oksygen fra ledningen 111, som vil ha stor høyhet, men lite volum, kan også være hensiktsmessig som et produkt. I denne utførelse kan det være ønskelig å drive stabelen slik at trykkene på mategassen og det oksygenfattige produkt er høyere enn trykket på oksygenproduktet. I dette tilfelle kan bruk av isolerende bæremateriale i stabelen være valgfritt fordi elektrolyttplatene vil få tilstrekkelig mekanisk støtte fra de formtilpassede lag og anodeforseglingene som tidligere beskrevet.



Ved høyere arbeidstrykk kan stabelanordningen kreve anordninger ved endene for å holde stabelen sammen. Disse endeanordninger arbeider på endeplatene 101 og 103 for å skape aksiale trykk-krefter som motvirker stabelens tilbøyelighet til å dele seg opp under slike trykk.

5

Selv om foreliggende oppfinnelse fortrinnsvis benyttes til separering av luft for å få oksygen med høy renhet og til rensing av inertgass for å fjerne restoksygen, kan oppfinnelsen anvendes på en hvilken som helst oksygenholdig gassblanding for et hvilket som helst ønsket formål eller sluttprodukt.

10

Elektrolyttcellestabelen ifølge oppfinnelsen kan fremstilles ved fremgangsmåter som er kjent på dette område for ioneledende keramikker, for eksempel som beskrevet i publisert europeisk patentsøknad nr. 0 682 379 A1 som er tidligere angitt. Oppfinnelsen kan utøves med hvilket som helst materiale som er kjent på dette område og som er i alminnelig bruk i ionelederstabler for elektrolytiske plater, elektroder, sammenkoblinger og forseglinger.

15

Andre stabelgeometrier kan tenkes der disse ville innbefatte utførelser av foreliggende oppfinnelse der forspenningselektrodene og de forskjøvede forseglinger benyttes for å styre potensialet over anodeforseglingen under omtrent 40 mV og fortrinnsvis under omtrent 25 mV. Forspenningselektroder og forskjøvede forseglinger kan anvendes med alternative stabelutformninger for innføring av mategass i stabelen, for uttak av oksygenfattig gass fra katodesidene av cellene, og/eller uttak av oksygen fra cellenes anodesider.

20

25

I en alternativ utførelse av oppfinnelsen er elektrisk isolerende materiale innlagt i katodeforseglingen og forspenningselektrodene benyttet som beskrevet ovenfor. Det isolerende materiale blir fortrinnsvis laget ved sintring av en blanding av magnesiumoksid ( $\text{MgO}$ ) og aluminiumoksid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), og det isolerende materiale forsegles til katodesidene av elektrolyttplaten sammenkoblende med et glass-keramisk forseglingsmiddel, for eksempel det som avledes fra et litiumaluminosilikat (LAS) glass. Ved fremstillingen av det isolerende materiale blir aluminiumoksid benyttet for å senke varmeutvidelseskoeffisienten for magnesiumoksidet slik at varmeutvidelseskoeffisienten for det isolerende materialet passer til koeffisienten for elektrolyttmaterialet og sammenkoblingsmaterialet. Noe magnesiumoksidspinell ( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ ) kan dannes på stedet under sintring av materialet. Som et alternativ kan aluminiumoksid og magnesiumoksid brennes ved temperaturer som er tilstrekkelig høye

30

35

til å danne  $\text{MgO/MgAl}_2\text{O}_4$  keramikk. Som et alternativ kan det isolerende materiale brennes samtidig med elektrolytten ved omtrent  $1550^\circ\text{C}$  uten bruk av forseglingsmiddel av glass.

- 5 I denne alternative utførelse som gjør bruk av isolerende materiale i katodeforseglingen er fullstendig forskyvning mellom anode- og katodeforseglingen ikke nødvendig, noe som skaper ytterligere fleksibilitet ved utformning av stabelen. Denne utførelse kan benyttes for en hvilken som helst stabelform som har direkte motstående eller delvis motstående anode- og katodeforseglinger så lenge stabelens geometri gjør det mulig å ta  
10 inn en forspenningselektrode. For eksempel kunne denne utførelse anvendes for den flate stabelutformning som er beskrevet i publisert europeisk patentsøknad nr. 0 682 379 A1 som er angitt ovenfor. Kombinasjonen av isolerende katodeforsegling og en forspenningselektrode muliggjør styring av potensialet over anodeforseglingen under omtrent 40 mV og fortrinnsvis under 25 mV.

15

#### EKSEMPEL 1

- Den isolerende bærer mellom katodesidene og elektrolyttplaten og sammenkoblingen som beskrevet ovenfor kan formes ved før stabelen monteres å påføre og brenne en  
20 væske som inneholder precursor-materialer i en væskeformet bærer. En væske for dannelsen av det isolerende bæremateriale ved brenning ble tilberedt som følger. 59,3 g aluminiumoksid (Alcoa, SG 16), 255,7 g magnesiumoksid (Martin-Marietta, MC10-325) og 35,0 g litiumaluminosilikatglass (Speciality Glass, SP1484-A) ble ført sammen og blandet i en rustfri stålbolle. 72,0 g av  $\alpha$ -Terpineol (Kodak) og 78,0 g av V-006  
25 (Heraeus, Cermalloy Division) ble blandet i en annen rustfri stålbolle. En tredjedel av den første blanding ble langsomt tilsatt væskene og blandet med en gummispatel inntil alt pulver var fuktet. Dette trinn ble gjentatt med det gjenværende pulver inntil alt pulver var tatt med. Blandingen ble så behandlet fire ganger gjennom en tre-valsers mølle for å danne den endelige masse, ved bruk av valseavstander som gjengitt nedenfor:

30

	Valseavstand inn	Valseavstand ut
Første trinn	0,032 cm	0,019 cm
Andre trinn	0,019 cm	0,006 cm
35 Tredje trinn	0,006 cm	<0,005 cm
Fjerde (siste) trinn	0,006 cm	<0,005 cm

## EKSEMPEL 2

En stabel på to celler ble konstruert og drevet for å demonstrere bruk av en stabelutførelse med forskjøvede forseglinger og forspenningselektroder. En rund stabel på to celler med en diameter på 7,6 cm ble konstruert fra 10 mol-% strontiumoksid-dopet ceriumoksid (SCO) elektrolyttplater og tre  $\text{La}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$  (LSM) sammenkoblingsplater anordnet i vekslende lag. Elektrolyttplatene var 0,025 cm tykke. Både sammenkoblingene og elektrolyttplatene hadde et sentralt hull, og hullene ble rettet inn i stabelen for å danne en sentral aksial ledning som samlet det oksygen som ble frembragt elektrokjemisk ved hver anode. Hver sammenkobling hadde en forseglende omløpende flate, 0,38 cm bred, nær den ytre omkrets av anodesiden for en glass-keramikkforsegling. Katodesiden på sammenkoblingen hadde en forseglingsplate som lå rundt det sentrale hull og også var 0,38 cm bredt. Elektrolyttplatene hadde forseglingsflater som ikke var elektroder på katode- og anodesidene og de var rettet inn med tilsvarende forseglingsflater på sammenkoblingene. Stabelkomponentene av elektrolytt- og sammenkobling ble bundet sammen ved disse forseglingsflater med et litiumaluminosilikat (LAS) glasskeramikk for å danne gasstette forseglinger.

Elektrodene på anodeside og katodeside, av lanthanstrontiumkoboltitt (LSCO),  $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{CoO}_{3-z}$ , der x ligger i området fra 0,2 til 1,0 og z er et tall som gjør forbindelsens ladning nøytral, ble påført elektrolyttplatene. Et overbelegg av LSCO og sølvpalladiumlegering ble påført elektrodene. Elektrodene ble anbragt slik at anoden hadde overstørrelse i forhold til katoden med 0,14 cm ved den ytre kant, slik at den del av anoden som stikker forbi den ytre omkrets av katoden dannet en forspenningselektrode som tidligere beskrevet. I tillegg ble det satt på en separat ytre forspenningselektrode eller jordkoblingsring av samme elektrodessammensetning på utsiden av den forlengede anode. Forspenningselektroden i form av den jordkoblede ring var 0,18 cm bred og var adskilt fra anoden med et 0,13 cm bredt gap av udekket SCO elektrolytt. Katodearealet var  $21 \text{ cm}^2$  per plate. Utformning av anoden og forspenningselektroden var således svarende til det som er beskrevet på Figurene 3, 6B og 7B. Den isolerende bærer på Fig. 6B var ikke benyttet.

Elektrodene ble forbundet med 0,05 cm høye (0,13 cm brede) ribber på sammenkoblingen, adskilt med kanaler som var 0,13 cm brede. Sølv ble påført som et ledende lag mellom toppflatene på sammenkoblingens ribber og elektroden. Toppflaten på ribbene dannet et felles plan med tetningsflatene for forseglingen av glasskeramikk

på begge sider av sammenkoblingen. Kanalene tillot oksygen å strømme radialt mot den sentrale åpning i anoden og luft til å strømme på tvers av katoden som en kryss-strøm.

En av de avsluttende sammenkoblingsplater eller endeplater var festet til et stykke av 446 rustfritt stålrør med en utvendig diameter på 0,48 cm for uttak av oksygen. Den sentrale åpning i den andre sammenkoblingsplate eller endeplate var lukket med en LSM-plate festet med LAS og platen hadde en størrelse på 25 cm<sup>2</sup>. Luft ble tilført katodesiden av stabelen med omtrent 2 standard liter per minutt. En spenning på omtrent 1 V ble påtrykket de endeplater for LSM-sammenkoblingen ved 750°C og stabelens elektriske strøm og resulterende strømningshastighet for elektrokjemisk frembragt oksygen ble målt. Et digitalt massestrømmeter festet til SS446-røret ble benyttet for å måle strømmen. Anodesidens trykk ble regulert med en håndventil festet til SS446-røret og overvåket med en Bourdon-rør trykkmåler. Forseglingenes godhet ble bestemt ved beregning av strømningseffektiviteten som følger:

$$\begin{aligned} \text{strømningseffektivitet (\%)} &= \frac{100 \times \text{målt O}_2 \text{ strømningshastighet (std cm}^3/\text{min)}}{\text{teoretisk O}_2 \text{ strømningshastighet (100\% effektiv)}} \\ &= \frac{100 \times \text{målt O}_2 \text{ strømningshastighet (std cm}^3/\text{min)}}{\text{målt strøm (amp)} \times 3,75 \times N} \end{aligned}$$

der N er antall celler i stabelen og 3,75 er en omregningsfaktor som har enhetene (std cm<sup>3</sup>/min) / (amp). Strømmen i std cm<sup>3</sup>/min er angitt ved 21°C. Den teoretiske strømningshastighet blir realisert når all strøm blir fullt utnyttet til fremstilling av det samlede oksygenprodukt, dvs. når et molekyl oksygen dannes for hver fire elektroner som flyter gjennom hver celle, og all oksygen samles med fravær av lekkasjer ved forseglinger.

Stabelen ble holdt på en permanent trykkforskjell på 2 kPa (anodesidetrykk høyere) for de første 1025 timer driftstid, og deretter med en trykkforskjell på 10 kPa (anodesidetrykk høyere). Stabelens drift ble overvåket kontinuerlig i 5000 timer og den målte oksygenstrøm var stort sett 100% av det teoretiske i løpet av hele perioden. Dette viser gode forseglinger og fravær av påvisbare lekkasjer.

## EKSEMPEL 3

En rund stabel med 2 celler og en diameter på 7,6 cm ble utført på samme måte som  
 5 beskrevet i Eksempel 2, bortsett fra at elektrodene strakte seg sammen ved deres ytre  
 kanter på elektrolyttplatene, dvs. den ytre diameter på begge elektroder svarte til  
 hverandre og det var ingen forspenningselektrode på anodesiden. Katodearealet var 31  
 $\text{cm}^2$  per plate. Stabelen ble drevet ved 750°C på en måte svarende til Eksempel 2  
 bortsett fra at en spenning på 1V ble påtrykket stabelen ved en permanent trykkforskjell  
 10 på 6,9 kPa (anodesidens trykk høyere). Strømningseffektivitet ble overvåket online i  
 480 timer på samme måte som beskrevet i Eksempel 2. Etter drift av stabelen i 480  
 timer ble strømningseffektiviteten målt over trykkforskjellsområdet fra 0 til 6,9 kPa  
 (anodesidens trykk høyere). Driften av stabelen ble avsluttet etter 505 timer på grunn av  
 et betydelig tap i strømningseffektivitet. Tapet av strømningseffektivitet viste seg å være  
 15 resultat av at grensesnittet mellom LAS-forseglingen og elektrolytten på anodesiden av  
 elektrolyttplaten løsnet. Stabelens ytelse som en funksjon av online driftstid er vist på  
 Fig. 11 for sammenligning med stabelens ytelse i Eksempel 2. Denne sammenligning  
 viser at forspenningselektroder er nødvendig i stabler som gjør bruk av forskjellige  
 forseglinger for å danne en robust gasstett anodeforsegling.

20

## EKSEMPEL 4

En rund stabel med 5 celler og en diameter på 7,6 cm ble konstruert ifølge den  
 prosedyre som er beskrevet for Eksempel 2, bortsett fra at 5 elektrolyttplater og 6  
 25 sammenkoblinger ble benyttet. Anoden hadde overstørrelse i forhold til katoden med  
 0,11 cm ved den ytre kant. Anodesidens ytre ringelektrode for kobling til jord var 0,19  
 cm bred og var adskilt fra anoden med et gap på 0,10 cm med udekket SCO-elektrolytt.  
 Katodearealet var 24  $\text{cm}^2$  per plate. En isolerende bærer ble benyttet svarende til den  
 som er beskrevet under henvisning til Figurene 6B, 7B, 8 og 9 ved bruk av materialer  
 30 som ble klargjort ifølge Eksempel 1. Det isolerende bæremateriale ble bundet til  
 omkretsen som ikke er elektrode på katodesiden av elektrolytten og det flate areal ved  
 omkretsen av sammenkoblingen. Gap ble periodisk anordnet i det isolerende bærelag  
 for at luft skulle kunne strømme over katodene og oksygenfattig luft trekkes ut fra  
 katodene på samme måte som strømningsmønsteret som er vist på Fig. 10. Stabelen ble  
 35 drevet ved 750°C på en måte svarende til Eksempel 2, bortsett fra en spenning på 2V og  
 en permanent trykkforskjell på omtrent 35 kPa (anodesidens trykk høyere). Etter drift av  
 stabelen i 1680 timer ble strømningseffektiviteten målt over trykkforskjellsområdet fra 0

til 83 kPa (anodesidens trykk høyere) og var hovedsakelig 100% som vist på Fig. 12. Dette angir ypperlig kvalitet på forseglingsene og dette ble opprettholdt ved bruk av forspenningselektroder og god kvalitet på elektrolyttplaten som ble opprettholdt ved bruk av det isolerende bærerlag. Fig. 12 viser også driftsdata over et

5 trykkforskjellsområde på 0-6,9 kPa for stabelen i Eksempel 3, som ikke hadde noen forspenningselektroder. Det sees at strømnings effektiviteten for denne stabelutførelse falt hurtig da trykkforskjellen ble satt opp.

## EKSEMPEL 5

10 For å bestemme maksimumsspenningen over hvilken spalting finner sted i grensesnittet mellom glasskeramikk LAS anodeforsegling og elektrolytten på anodesiden av elektrolyttplaten, ble flere pelletprøver klargjort og drevet ved forskjellige spenninger. Hver prøve omfattet en pellet av LSM sammenkoblingsmateriale med en diameter på

15 2,5 cm og var bundet med LAS direkte til en 0,038 cm tykk elektrolyttskive laget av SCO med en diameter på 2,6 cm. Elektrolytten hadde en 4 cm<sup>2</sup> LSCO elektrode med et belegg av LSCO og sølvpalladiumlegering påført luftsiden. Et porøst søvlag ble så påført elektroden for å virke som en strømsamler. En spenning ble påtrykket over hver LSM-pellet og strømsamleren ved 750°C, slik at elektroden ble negativt ladet, og

20 dermed simulerte utformningen av LAS og SCO i anodeforseglingen i stabelen. Spenningen ble målt som en funksjon av tid. Etter en sammenhengende driftsperiode på 300 til 3300 timer, ble pelletprøvene tatt ut av forsøket og LAS til SCO elektrolyttbindingen prøvet for spalting med et barberblad. Forholdet mellom driftstid, påtrykket spenning og bindingens godhet er gjengitt på Fig. 13. Området for spenninger

25 som ble påtrykket hver pellet er vist, og datapunktene angir maksimum påtrykket spenning i hver prøve. Resultatene viser tydelig at potensialet eller spenningen over anodeforseglingen og særlig over LAS:SCO stabelbindingene må holdes under omtrent 40 mV, og fortrinnsvis under 25 mV, for å unngå spalting ved LAS:SCO grensesnittet og opprettholde anodeforseglingens kvalitet.

## EKSEMPEL 6

Virkningene av forspenningselektrodens bredde og elektrolyttens tykkelse på spenningen som måles mellom anode og referanseanode (som nærmer seg til

35 anodeforseglingens potensial i en stabel) ble undersøkt ved bruk av en rekke prøver som omfattet en rektangulær 2,5 cm x 5,0 cm SCO elektrolyttplate med en tykkelse på 0,015 eller 0,038 cm. LSCO elektroder med et belegg av LSCO og sølvpalladiumlegering ble

påført begge sider av elektrolyttplaten. I hvert tilfelle var anodedimensjonene 1,9 x 1,9 cm, og katoden var underdimensjonert i forhold til anoden med varierende verdier. Dette resulterte i varierende verdier på forspenningsselektroden som ble dannet fordi anoden er større enn katoden. En LSCO referanseelektrode ble festet til anodesiden ved

5 området for anodeforseglingen av glasskeramikk i en helt sammensatt stabel, omtrent 0,065 cm fra kanten av anoden. Som et alternativ ble en blokk med LSM festet med LAS forsegling i området ved anode/glasskeramikkforseglingen i den ferdig sammensatte stabel, mens referanseelektroden var festet på katodesiden overfor LSM-blokken. I flere tilfeller ble en ytterligere forspenningsselektrode eller ring for kobling til

10 jord festet på anodesiden (svarende til Fig. 3) mellom anoden og referanseelektroden. Bredden på jordkoblingsringen og gapet mellom jordkoblingsringen og anoden ble inkludert i de angitte målinger av bredde for hele forspenningsselektroden. Denne bredde er lik den radiale avstand mellom ytterkanten av jordkoblingsringen og den ytre kant av katoden. Et porøst sølvlag ble så påført over elektrodene og referanseelektroden for å

15 virke som strømsamler.

En fast spenning på 0,7 V ble påtrykt over hovedelektrodene ved 750°C i luft, og jordkoblingsringen (hvis den fantes) og LSM-blokken (hvis den fantes) ble elektrisk koblet til anoden. Forseglingspotensialet ble målt mellom anode og referanseelektrode

20 for hver prøve, og forseglingspotensialet, som en funksjon av forspenningsselektrodens bredde, ble opptegnet på Fig. 14. De opptegnede data viser klart at bruken av en forspenningsselektrode reduserer forseglingspotensialet. Videre viste dataene at en jordkoblingsring er like effektiv når det gjelder å redusere forseglingspotensialet som en tilsvarende dimensjonert sammenhengende forlengelse av anoden, og at tilsvarende

25 reduksjoner i forseglingspotensial ble oppnådd med SCO-elektrolytter som var 0,015 cm og 0,038 cm tykke. Dette forsøk viser at for denne bestemte geometri, temperatur og elektrolyttmateriale er det nødvendig med en forspenningsselektrode som er minst omtrent 0,05 cm i bredde for å holde stabelens anodeforseglingspotensial under 40 mV når en spenning på 0,7 V påtrykkes over cellen. En forspenningsselektrode med en

30 bredde på omtrent 0,1 cm vil holde anodeforseglingspotensialet lavere enn omtrent 25 mV med 0,7 V påtrykket over cellen. Forholdet mellom forseglingspotensialet og bredden på forspenningsselektroden kan bestemmes på en enkel måte for andre cellegeometrier, materialer og arbeidsbetingelser ved å utføre tilsvarende eksperimenter.

## EKSEMPEL 7

Isolerende materiale ble klargjort til bruk i katodeforseglinger eller i elektrisk isolerende  
 5 bæremateriale som beskrevet tidligere. 81,2 g magnesiumoksid (Baker chromatographic  
 grade 2477-5) og 18,8 g aluminiumoksid (Alcoa A-16 superground) pulvere ble tilsatt  
 en beholder av polyetylen på en liter (omtrent halvfull av 12,5 mm diameter  
 slipemedium [høyrenhets  $\text{ZrO}_2(3 \text{ mol-\% } \text{Y}_2\text{O}_3)$ ]) inneholdende væsker av  
 reagenskvalitet (92,3 g toluen og 22,8 g etanol) og 0,5 g dispergeringsmiddel (Witco  
 10 Chemical grade PS-21A). Oppslemmingen ble blandet i 16 timer ved rotasjon ved 115  
 rpm. 55,0 g forhåndsoppløst bindemiddel/plastifikator (18,0 g polyvinylbutyral  
 bindemiddel [Monsanto Grade Butvar B-79], 7,2 g butylbenzylftalat plastifikator  
 [Monsanto grade Santicizer S-160], 23,8 g toluen og 7,0 g etanol) ble tilsatt og  
 vellingen ble blandet i ytterligere 3 timer. Oppslemmingen ble avluftet i en  
 15 vakuumdesikkator og båndstøpt på 0,075 mm tykk polyesterfilm med en  
 doktorblad høyde på 0,41 mm. Det tørkede bånd hadde en tykkelse på 0,14 mm. Dette  
 $\text{MgO}$ -18,8 vekt-%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bånd ble brent på en alfa-aluminiumoksid setter etter følgende  
 program: 20-500°C i 18 timer, 500-1450°C i 6 timer (holdt på 1450°C i 2 timer), 7 timer  
 til 20°C. Det sintrede bånd hadde en densitet på 3,50 g/cc eller 97,8% av teoretisk  
 20 densitet (basert på røntgendiffraksjon som viste at de eneste faser som var til stede var  
 $\text{MgO}$  og  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ ). Den beregnede mengde av  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  som ble dannet var 26,3  
 volumprosent. Flere bånd ble lagt i lag til et barreformet bånd ved et trykk på 25 mPa  
 ved 65°C i et minutt. Disse barrer ble sintret ved bruk av samme program og til samme  
 densitet. Varmentvidelse viste identisk utvidelse/sammentrekning mellom 20 og 1100°C  
 25 med både SCO elektrolytten og sammenkoblingsmaterialer av  
 lanthanstrontiummanganitt (LSM).

## EKSEMPEL 8

30 SCO elektrolyttmateriale ble klargjort og brent samtidig med isolerende materiale fra  
 Eksempel 7 for å vise bindingen mellom disse to materialer. 279,4 g ceriumoksid  
 (Rhône-Poulenc) og 26,6 g strontiumkarbonat (Solvay) pulvere ble tilsatt en polyetylen-  
 beholder på 1 liter (omtrent halvfull av 12,5 mm diameter slipemedier [høyrenhets  $\text{ZrO}_2$   
 (3 mol-%  $\text{Y}_2\text{O}_3$ )] inneholdende væsker av reagenskvalitet (64,2 g toluen og 16,1 g  
 35 etanol) og 2,6 g dispergeringsmiddel (Witco Chemical grade PS-21A). Oppslemmingen  
 ble blandet i 16 timer ved rotasjon ved 115 rpm. 80,6 g forhåndsoppløst  
 bindemiddel/plastifikator (18,0 g polyvinylbutyral bindemiddel [Monsanto Grade



Butvar B-79], 7,2 g butylbenzylftalat plastifikator [Monsanto Grade Santicizer S-160], 23,8 g toluen og 6,0 etanol) ble tilsatt og vellingen ble blandet i ytterligere 3 timer. Oppslemmingen ble avluftet i en vakuumdesikkator og båndstøpt på en 0,075 mm tykk polyesterfilm med en doktorbladhøyde på 0,41 mm. Det tørkede bånd hadde en tykkelse på 0,14 mm. Dette  $\text{CeO}_2$ /13,8 vekt-%  $\text{SrCO}_3$  bånd ble laminert til  $\text{MgO}$ -18,8 vekt-%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bånd fra Eksempel 7 ved et trykk på 25 mPa ved 65°C i ett minutt. Det laminerte bånd ble brent på en aluminiumoksid setter ved bruk av følgende program: 20-500°C i 18 timer, 500-1540°C i 9,5 timer (holdt på 1540°C i 2 timer), 8 timer til 20°C. Delene sintret godt sammen med ypperlig binding ved grensesnittet. Energidispergerende spektroskopi viste strontiummigrering fra SCO-elektrolytten inn i det magnesiumoksid/spinellisolerende laget, sannsynligvis med dannelse av en strontiumaluminatfase i det isolerende lag.

Foreliggende oppfinnelse omfatter således flere forbedringer av stabler med flate elektrolyttceller der svikt i anodeforsegling er opphevet. En av disse forbedringer er den radiale forskyvning av anode- og katodeforseglinger slik at forseglingene ikke overlapper på motstående sider av elektrolyttplaten. Dette krever en bestemt geometri for celleutformningen som beskrevet ovenfor. En annen forbedring er bruken av en forspenningselektrode på anodesiden av elektrolyttplaten, og dette modifierer eller forspenner elektrolyttpotensialet i forseglingsområdet slik at strømmen som flyter gjennom anodeforseglingen blir bragt ned på et minimum. Denne forspenningselektrode kan være en forlengelse av anoden utover ytterkanten av katoden på den motstående side av elektrolyttplaten. Som et alternativ eller som et tillegg kan en separat forspenningselektrode anbringes på elektrolytten fortrinnsvis mellom anoden og anodeforseglingen. Det har vist seg at en kombinasjon av forskjøvede forseglinger og forspenningselektroder er særlig effektiv når det gjelder å redusere eller eliminere svikt i anodeforsegling ved å styre potensialet over anodeforseglingen på mindre enn omtrent 40 mV. Et annet trekk ved oppfinnelsen er den isolerende bærer som er anbragt mellom katodesidene av elektrolytt og sammenkobling som eliminerer mulig skadelige påkjenninger på elektrolyttplaten når gasstrykket på anodesiden av den elektrolytiske celle er større enn gasstrykket på cellens katodeside.

Forbedringene foreliggende oppfinnelse byr på er ikke begrenset til de stabelgeometrier som her er beskrevet. Forspenningselektroder og forskjøvede forseglinger kan anvendes på alternative stabelutformninger med forskjellige fremgangsmåter til innføring av mategass i stabelen, for uttak av oksygenfattig gass fra katodesidene av cellene og/eller uttak av oksygen fra cellenes anodesider. Ved enhver anvendelse kan

forspenningselektroder og forskjøvede forseglinger utnyttes for å styre potensialet over anodeforseglingen under omtrent 40 mV og fortrinnsvis under omtrent 25 mV.

- De karakteristiske trekk ved foreliggende oppfinnelse er beskrevet i den foregående
- 5 beskrivelse. En fagmann på området vil forstå oppfinnelsen og kan gjøre forskjellige modifikasjoner uten at dette avviker fra oppfinnelsens grunnleggende ånd og uten å avvike fra omfang og ekvivalenter i kravene som følger.

P a t e n t k r a v

1.

Fremgangsmåte til separering av oksygen fra en oksygenholdig gass, k a r -  
 5 a k t e r i s e r t v e d at den omfatter:

- (a) sammenføring av den oksygenholdige gass med en første overflate av en flat fast elektrolytt som er i stand til å transportere oksygenioner;
- 10 (b) tilførsel av elektroner til den første overflate av den flate faste elektrolytt med en katode i elektrisk kontakt med en del av den første overflate;
- (c) elektrokjemisk reduksjon av oksygenet i den oksygenholdige gass ved forbruk av elektroner til dannelsen av oksygenioner;
- 15 (d) transport av de resulterende oksygenioner som en strøm gjennom den faste elektrolytt ved å påtrykke et elektrisk potensial over den faste elektrolytt;
- (e) dannelsen av oksyngengass ved en andre overflate av den faste elektrolytt ved  
 20 forbruk av oksygenioner og produksjon av elektroner;
- (f) ledning av elektronene fra trinn (e) fra den andre overflate med en anode i elektrisk kontakt med en del av den andre overflate;
- 25 (g) ledning av elektronene fra trinn (f) fra anoden med en gassugjennomtrengelig elektrisk ledende sammenkobling som er i elektrisk kontakt med anoden;
- (h) samling av oksyngengass i et hulrom som er dannet i det minste delvis av den andre overflate på den faste elektrolytt, den gassugjennomtrengelige elektrisk  
 30 ledende sammenkobling, og en gasstett anodeforsegling som ligger over en del av den andre overflate av den faste elektrolytt og en motstående del av den elektrisk ledende sammenkobling;
- (i) uttak av oksyngengass fra hulrommet;
- 35 (j) uttak av en oksygenfattig gass fra berøring med den første overflate av den flate faste elektrolytt; og

(k) opprettholdelse av et anodeforseglingspotensial under omtrent 40 mV.

2.

5 Fremgangsmåte som angitt i krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at anodeforseglingspotensialet holdes på mindre enn omtrent 40 mV med en eller flere forspenningselektroder.

3.

10 Fremgangsmåte som angitt i krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at trykket på oksyngengassen som dannes ved den andre overflate av den faste elektrolytt er større enn trykket på den oksygenholdige gass ved den første overflate av den faste elektrolytt.

15 4.

Fremgangsmåte som angitt i krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at den oksygenholdige gass er luft.

5.

20 Fremgangsmåte som angitt i krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at den oksygenholdige gass omfatter argon og at et argonprodukt som er fattig på oksygen trekkes ut etter kontakt mellom den oksygenholdige gass og den første overflate av den faste elektrolytt og etter at oksygen er fjernet ved reduksjon og transport over den faste elektrolytt i trinnene (c) og (d).

25

6.

Elektrolyttplate for en flat elektrolytisk celle som er egnet til separering av oksygen fra en oksygenholdig gassblanding, der elektrolyttplaten har en anodeside og en katodeside, og der den flate elektrolytiske celle omfatter elektrolyttplaten, en overflate på en første  
30 elektrisk ledende gassugjennomtrengelig sammenkobling i elektrisk kontakt med katodesiden av elektrolyttplaten og en overflate av en andre elektrisk ledende gassugjennomtrengelig sammenkobling i elektrisk kontakt med anodesiden av elektrolyttplaten, k a r a k t e r i s e r t v e d at elektrolyttplaten omfatter:

35

(a) en flat fast elektrolytt som er i stand til å transportere oksygenioner;

(b) en anode i elektrisk kontakt med en overflate av den flate faste elektrolytt;

(c) en katode i elektrisk kontakt med den motstående overflate av den flate faste elektrolytt; og

5

(d) en eller flere forspenningselektroder, der hver forspenningselektrode er definert som en hvilken som helst elektrode som er:

(d1) i elektrisk kontakt med elektrolyttplaten,

10

(d2) plassert på et område av elektrolyttplaten slik at området ikke har noe katodemateriale på den motstående side, og

(d3) i elektrisk kontakt med den andre elektrisk ledende gassugjennomtrengelige sammenkobling.

15 7.

Elektrolyttplate som angitt i krav 6, k a r a k t e r i s e r t v e d at den videre omfatter en gasstett forsegling mellom katodesiden av elektrolyttplaten og overflaten av den første elektrisk ledende gassugjennomtrengelige sammenkobling der den gasstette forsegling omfatter elektrisk isolerende materiale.

20

8.

Flat elektrolytisk celle egnet til separering av oksygen fra en oksygenholdig gassblanding, k a r a k t e r i s e r t v e d at den omfatter:

25

(a) en fast elektrolyttplate som er i stand til å transportere oksygenioner, der platen har en anodeside og en katodeside;

(b) en første elektrisk ledende gassugjennomtrengelig sammenkobling med en katodeside i elektrisk kontakt med katodesiden på elektrolyttplaten;

30

(c) en andre elektrisk ledende gassugjennomtrengelig sammenkobling med en anodeside i elektrisk kontakt med anodesiden av elektrolyttplaten;

35

(d) et første hulrom som i det minste delvis er dannet av katodesiden på elektrolyttplaten, katodesiden av den første sammenkobling og en eller flere gasstette katodeforseglinger anbragt mellom disse; og

- (e) et andre hulrom som er dannet i det minste delvis av anodesiden av elektrolyttplaten, anodesiden av den andre sammenkobling og en eller flere gassette anodeforseglinger mellom disse;

5 der hver av de en eller flere anodeforseglinger er fullstendig forskjøvet i forhold til hver av de en eller flere katodeforseglinger på motstående sider av elektrolyttplaten, slik at projeksjonen av hver anodeforsegling på katodesiden av elektrolyttplaten ikke overlapper noen av de en eller flere katodeforseglinger.

10 9.

Elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass,  
k a r a k t e r i s e r t v e d at den omfatter:

(a) en flerhet av flate faste elektrolyttplater som er i stand til å transportere  
15 oksygenioner, der hver plate har en anodeside, en katodeside, en ytre kant og en åpning gjennom platen beliggende i et indre område av denne der anodesiden har en anode i elektrisk kontakt med denne og er omgitt av et sammenhengende omkretsområde som ikke elektrode mellom den ytre kant av platen og anoden, og ved at katodesiden har en katode i elektrisk kontakt med denne;

20

(b) en flerhet av flate, gassugjennomtrengelige elektrisk ledende sammenkoblinger som hver har en anodeside, en katodeside, en ytre kant og minst en gjennomgående åpning i det indre område, der

25

anodesiden har et sammenhengende flatt omkretsparti ved den ytre kant og en eller flere gasspassasjer som er dannet ved inntrykninger som er forbundet med hverandre i anodesiden, hvilke passasjer er anbragt mellom det flate omkretsparti og åpningen og er i strømningsforbindelse med denne,

30

med elektrolyttplater og sammenkoblinger stablet avvekslende for å danne en stabel med flate elektrolytiske celler elektrisk koblet i serie, der hver celle er dannet av en elektrolyttplate, med anodesiden på en første sammenkobling i elektrisk kontakt med anodesiden av elektrolyttplaten, og katodesiden av en andre sammenkobling i elektrisk kontakt med  
35 katodesiden av elektrolyttplaten, og

en anodeforsegling anbragt mellom og bundet til det sammenhengende omkretsområde som ikke er elektrode på anodesiden av elektrolyttplaten og det sammenhengende flate omkretsområde ved den ytre kant av anodesiden av den første sammenkobling, som i det minste delvis danner et oksygensamlende hulrom for samling av oksyngengass dannet på anodesiden av elektrolyttplaten;

(c) en eller flere forspenningselektroder i elektrisk kontakt med anodesiden av hver elektrolyttplate;

(d) en ribbe for kobling til jord dannet på anodesiden av hver sammenkobling som en hevet rygg rundt de en eller flere gasspassasjer som er dannet ved sammenkoblede inntrykninger i anodesiden av sammenkoblingen, der jordkoblingsribben er i kontakt med minst en av de en eller flere forspenningselektroder;

(e) anordning for påtrykning av et elektrisk potensial over flerheten av plane elektrolytiske celler som skaper elektronstrøm mellom sammenstående celler gjennom sammenkoblingene;

(f) anordning for innføring av oksygenholdig gass i stabelen av elektrolytiske celler;

(g) anordning for uttak av oksyngengass fra stabelen av elektrolytiske celler; og

(h) anordning for uttak av oksygenfattig gass fra stabelen av elektrolytiske celler.

10.

Anordning som angitt i krav 9, k a r a k t e r i s e r t v e d at katodesiden av hver elektrolyttplate har et sammenhengende omkretsområde som ikke er elektrode ved den ytre kant av platen og et annet sammenhengende område som ikke er elektrode rundt åpningen, der katoden er anbragt mellom områdene som ikke er elektroder.

11.

Anordning som er angitt i krav 10, k a r a k t e r i s e r t v e d at katodesiden av hver sammenkobling har et sammenhengende flatt omkretsområde ved den ytre kant, et hevet sammenhengende flatt område som omgir åpningen og en

eller flere gasspassasjer som er dannet i katodesiden av en flerhet av hevede partier som er plassert mellom det flate omkretsområde og det flate område som omgir åpningen der de hevede partier og det hevede sammenhengende flate område er i samme plan og der gasspassasjene er i strømningsforbindelse med deler av det sammenhengende flate område ved den ytre kant.

12.

Anordning som angitt i krav 11, k a r a k t e r i s e r t v e d at en katodeforsegling er anbragt mellom det hevede sammenhengende flate område som angir åpningen i katodesiden av sammenkoblingen og det sammenhengende område som ikke er elektrode på katodesiden av elektrolyttplaten som omgir åpningen gjennom denne og som danner et delvis lukket hulrom som den oksygenholdige gass strømmer gjennom.

13.

Anordning som angitt i krav 12, k a r a k t e r i s e r t v e d at den omfatter elektrisk isolerende bæremateriale anbragt mellom det sammenhengende omkretsområde som ikke er elektrode på katodesiden av hver elektrolyttplate og det sammenhengende flate område ved ytterkanten av katodesiden av hver tilstøtende sammenkobling.

14.

Anordning som angitt i krav 13, k a r a k t e r i s e r t v e d at det isolerende bæremateriale er anbragt slik at et hulrom dannes i hver elektrolytisk celle i det minste delvis av det isolerende bæremateriale, katodesiden av en elektrolyttplate, katodesiden av en tilstøtende sammenkobling og katodeforseglingen slik at hulrommet er i strømningsforbindelse med anordningen for innføring av oksygenholdig gass i stabelen av elektrolytiske celler og anordningen for uttak av oksygenfattig gass fra stabelen av elektrolytiske celler.

15.

Anordning som angitt i krav 13, k a r a k t e r i s e r t v e d at åpningene i hver elektrolyttplate og hver sammenkobling sammen med katodeforseglingene danner en aksial passasje gjennom de stablede elektrolyttplater og sammenkoblinger, hvilken passasje står i strømningsforbindelse med de oksygensamlende hulrom og ved at den aksiale passasje er innrettet for uttak av oksygenngass.



16.

Materiale som er egnet som en elektrisk isolerende bærer mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av  
5 oksygen fra en oksygenholdig gass, hvilket materiale fremstilles ved brenning av en blanding omfattende uorganiske oksidglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikker ved mer enn omtrent 700°C, der varmeutvidelseskoeffisienten for blandingen etter brenning er forskjellig fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for  
10 sammenkoblingen med mindre enn omtrent 2 mikrometer / (meter · °C).

17.

Materiale som angitt i krav 16, k a r a k t e r i s e r t v e d at blandingen som omfatter uorganisk oksidglass eller glasskeramikk kombinert med en  
15 eller flere elektrisk isolerende keramikker før brenning inneholder omtrent 0,3 til omtrent 27 vekt-% av et litiumaluminosilikatglass i blanding med de elektrisk isolerende keramikker magnesiumoksid (MgO) og aluminiumoksid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), og der vektforholdet mellom magnesiumoksid og aluminiumoksid i blandingen før brenning er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8.

20

18.

Fremgangsmåte for fremstilling av et materiale som er egnet til bruk som en elektrisk isolerende bærer mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass omfatter  
25 brenning av en blanding av uorganisk oksidglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikker ved temperatur over 700°C for å danne et elektriske isolerende bæremateriale med en varmeutvidelseskoeffisient som skiller seg fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkoblingen med mindre enn 2 mikrometer / (meter · °C).

30

19.

Fremgangsmåte som angitt i krav 18, k a r a k t e r i s e r t v e d at blandingen omfatter uorganisk oksidglass eller glasskeramikk kombinert med en eller flere elektrisk isolerende keramikker før brenning inneholder omtrent 0,3  
35 til omtrent 27 vekt-% av et litiumaluminosilikatglass i blanding med de elektrisk isolerende keramikker magnesiumoksid (MgO) og aluminiumoksid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), og der

vektforholdet mellom magnesiumoksid og aluminiumoksid i blandingen før brenning er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8.

20.

- 5 Materiale som er egnet til bruk som en elektrisk isolerende bærer mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass, k a r a k t e r i s e r t v e d at materialet er laget ved sintring av en blanding omfattende en eller flere elektrisk isolerende keramikker for å danne et elektrisk isolerende bæremateriale med en  
10 varmeutvidelseskoeffisient som skiller seg fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkoblingen med mindre enn omtrent 1 mikrometer / (meter · °C).

21.

- 15 Materiale som angitt i krav 20, k a r a k t e r i s e r t v e d at blandingen omfatter magnesiumoksid (MgO) og aluminiumoksid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) med en sammensetning slik at vektforholdet mellom magnesiumoksid og aluminiumoksid i blandingen før sintring er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8.

20 22.

- Fremgangsmåte for fremstilling av et materiale som er egnet til bruk som elektrisk isolerende bærer mellom en elektrisk ledende sammenkobling og en elektrolytt i en elektrokjemisk anordning for separering av oksygen fra en oksygenholdig gass, k a r a k t e r i s e r t v e d at den omfatter sintring av en blanding  
25 av en eller flere elektrisk isolerende keramikker for å danne et elektrisk isolerende bæremateriale med en varmeutvidelseskoeffisient som er forskjellig fra varmeutvidelseskoeffisienten for elektrolytten eller varmeutvidelseskoeffisienten for sammenkoblingen med mindre enn omtrent 1 mikrometer / (meter · °C).

30 23.

- Fremgangsmåte som angitt i krav 22, k a r a k t e r i s e r t v e d at blandingen omfatter magnesiumoksid (MgO) og aluminiumoksid (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) med en slik sammensetning at vektforholdet mellom magnesiumoksid og aluminiumoksid i blandingen før brenning er mellom omtrent 0,2 og omtrent 8.

24.

Fremgangsmåte som angitt i krav 22, k a r a k t e r i s e r t

- v e d binding av det elektrisk isolerende bæremateriale til elektrolytten ved samtidig  
5 brenning av det elektrisk isolerende bæremateriale med elektrolytten ved temperaturer  
som er tilstrekkelig til å binde det isolerende bæremateriale direkte til elektrolytten.

25.

Fremgangsmåte som angitt i krav 22, k a r a k t e r i s e r t

- 10 v e d at den videre omfatter binding av det elektrisk isolerende bærematerialet til  
elektrolytten og sammenkoblingen ved anbringelse av uorganisk oksidglass eller  
glasskeramikk mellom den isolerende bærer og elektrolytten, anbringelse av uorganisk  
oksidglass eller glasskeramikk mellom den isolerende bærer og sammenkoblingen og  
brenning ved en temperatur som er tilstrekkelig til å binde den isolerende bærer både til  
15 elektrolytten og til sammenkoblingen.

26.

Fremgangsmåte som angitt i krav 25, k a r a k t e r i s e r t

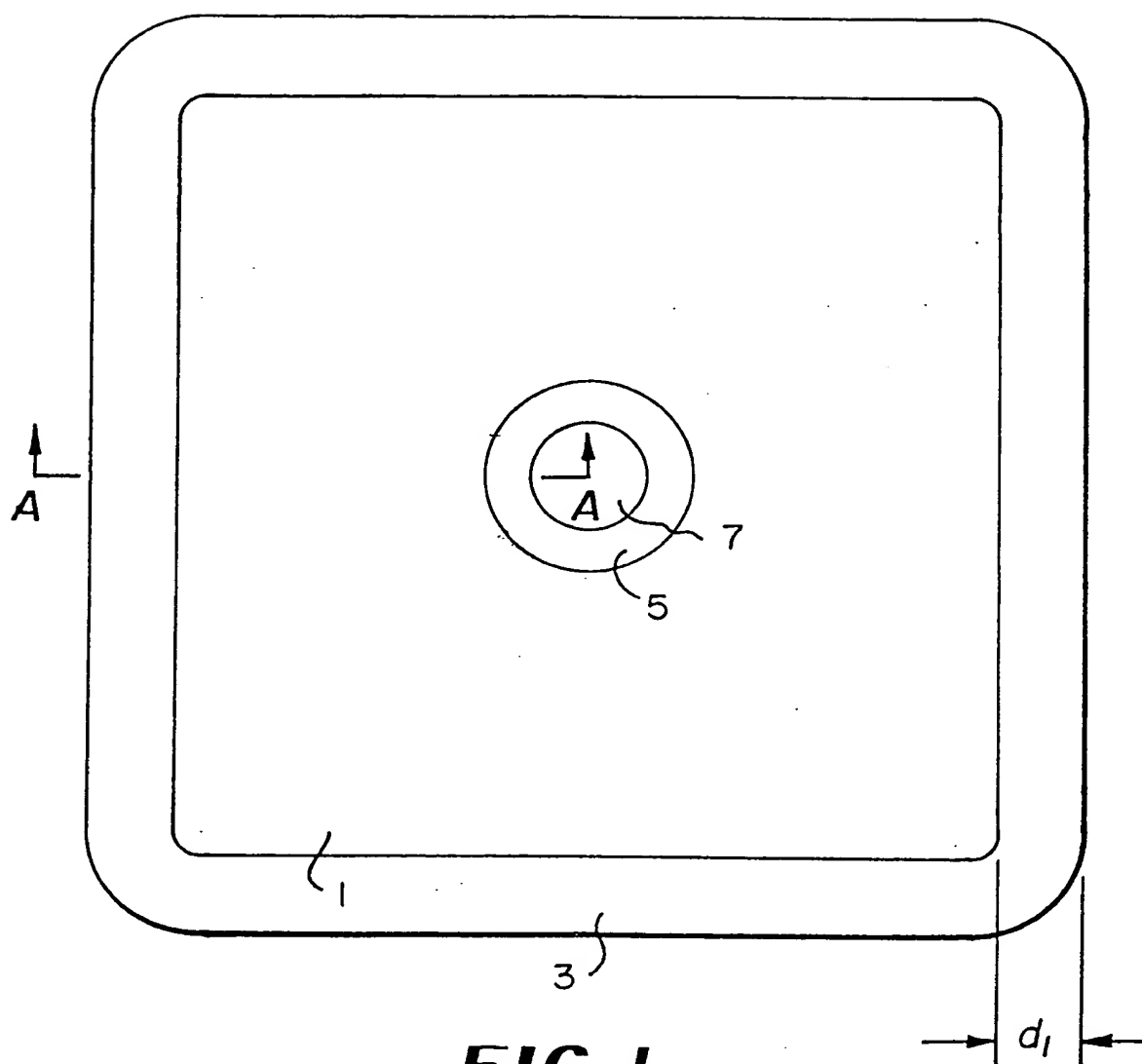
- v e d at det uorganiske oksidglass eller glasskeramikken er et  
20 litiumaluminosilikatglass.

4u

PATENTSTYRET

26.FEB98 974399

1/14

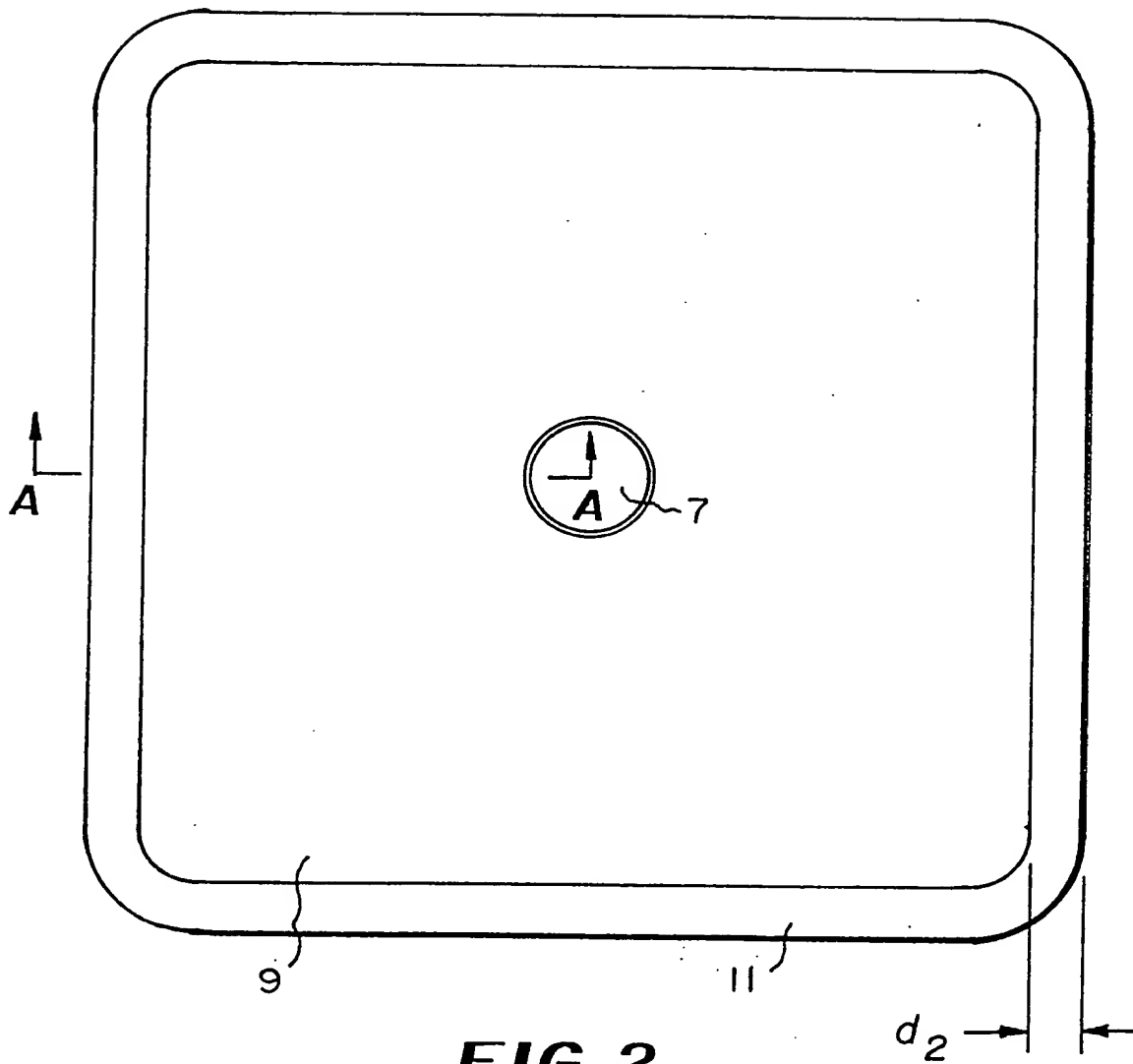


**FIG. 1**

4v

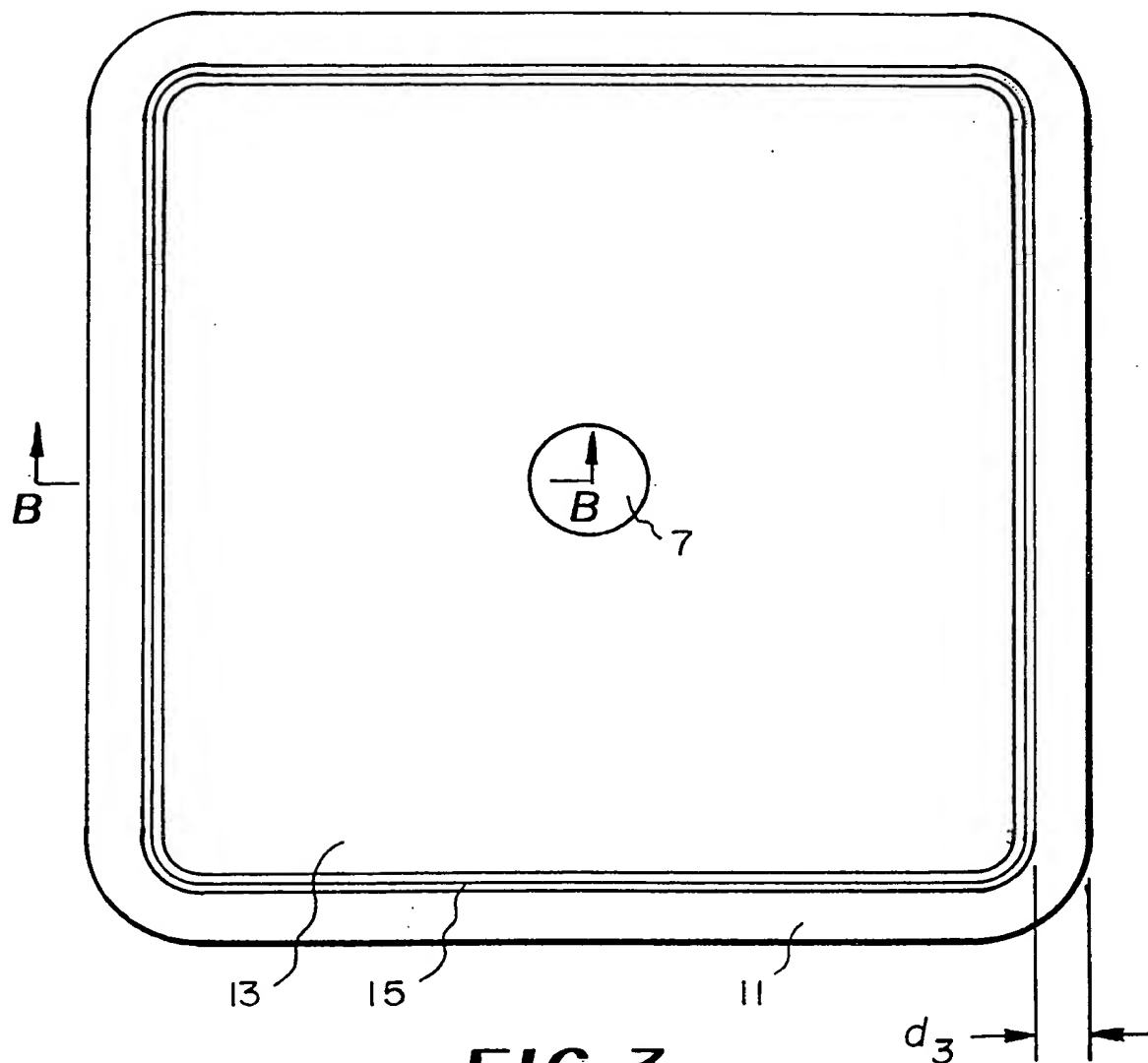
PATENTSTYREI  
26.FEB98 974399

2/14



**FIG. 2**

3/14



4/14

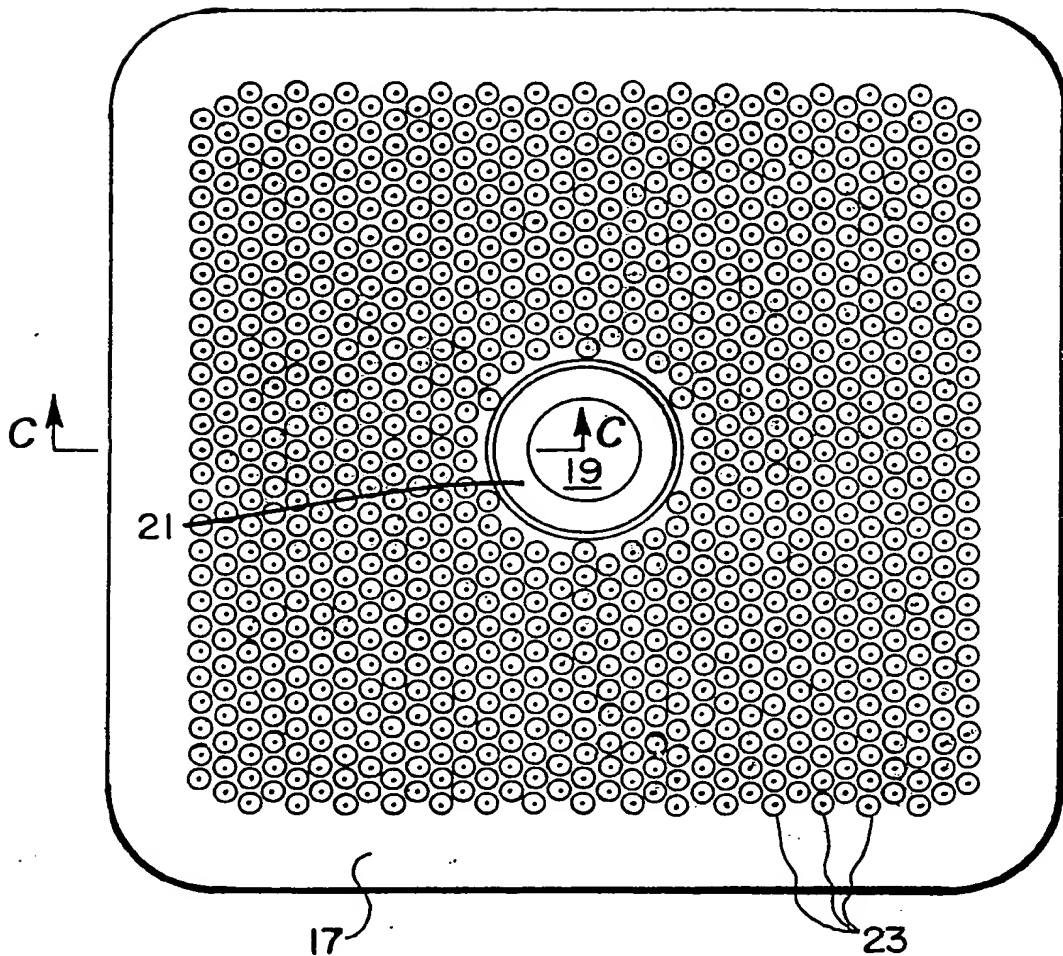


FIG. 4

5/14

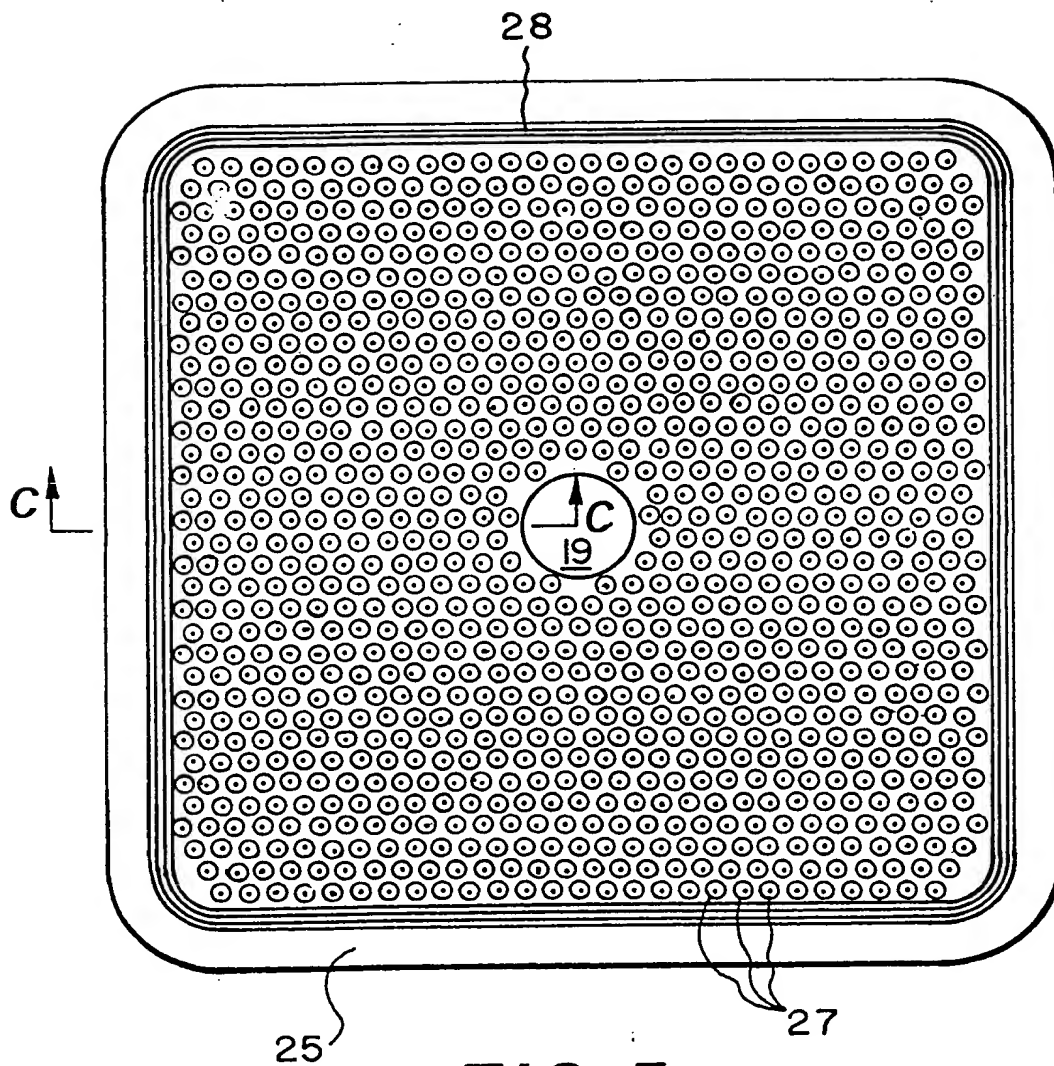
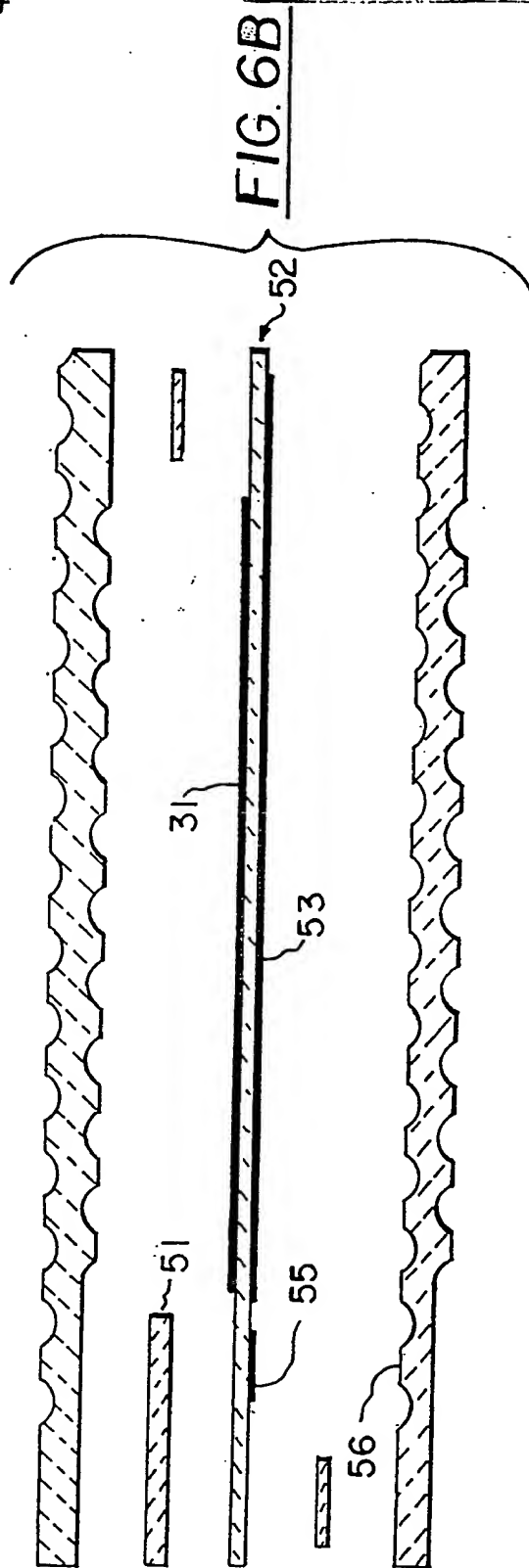
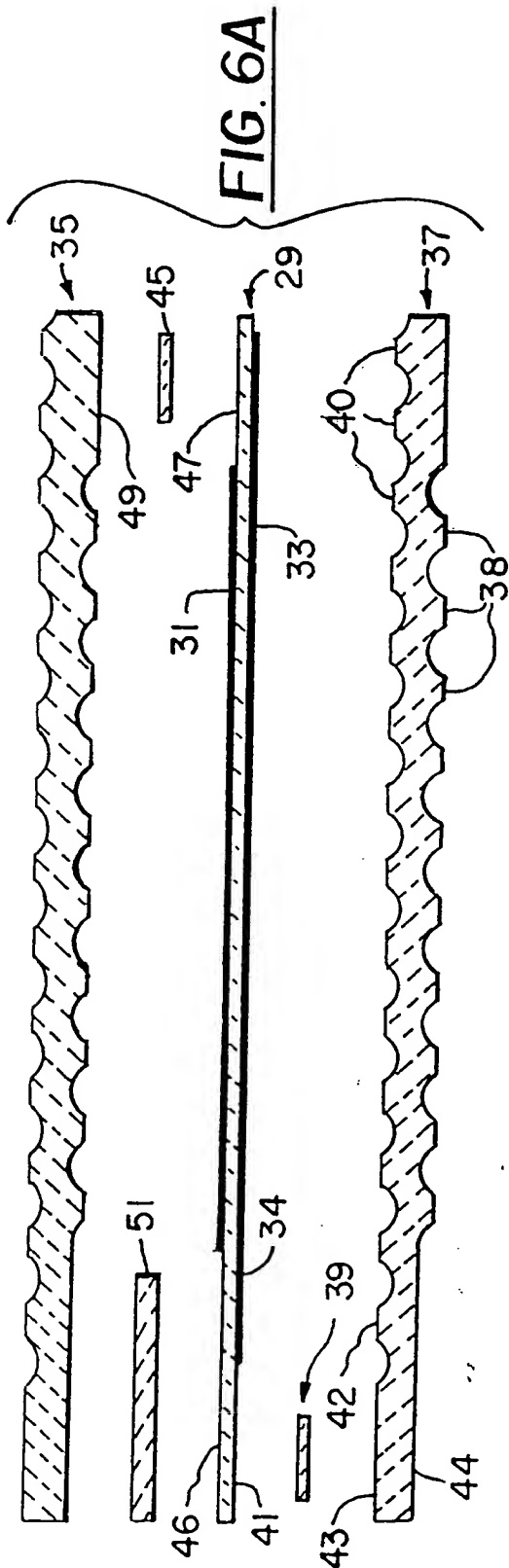


FIG. 5



6/14



7/14

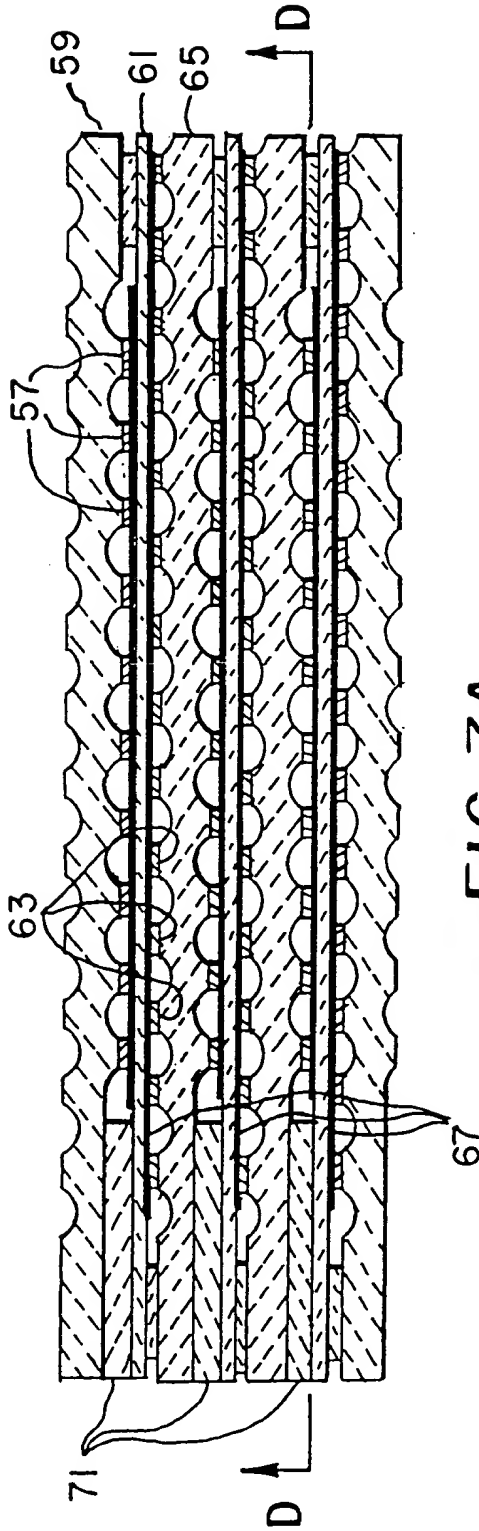


FIG. 7A

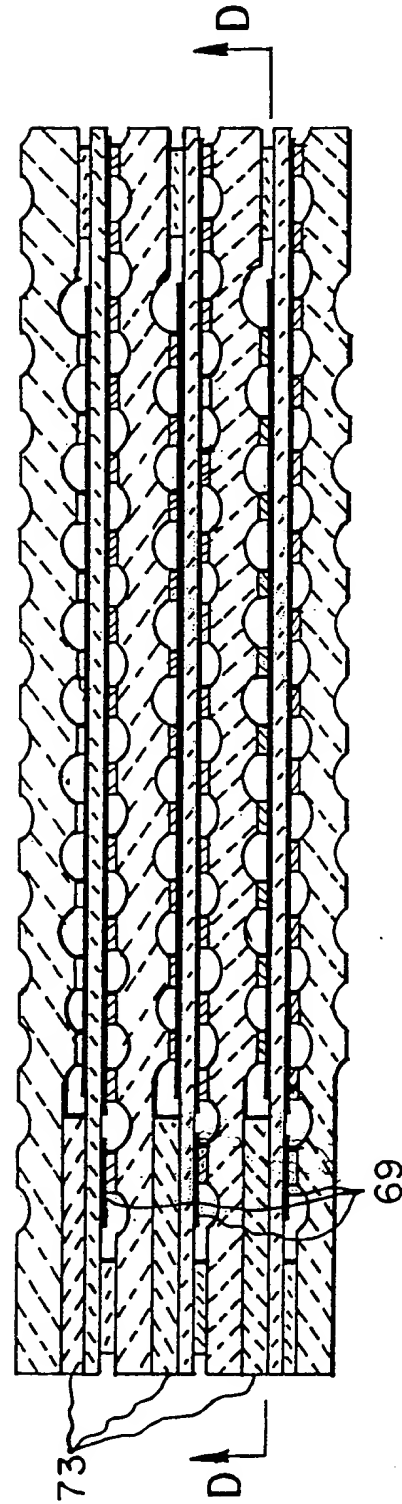


FIG. 7B

4c

PATENTSTYRET

26.FEB98 974399

8/14

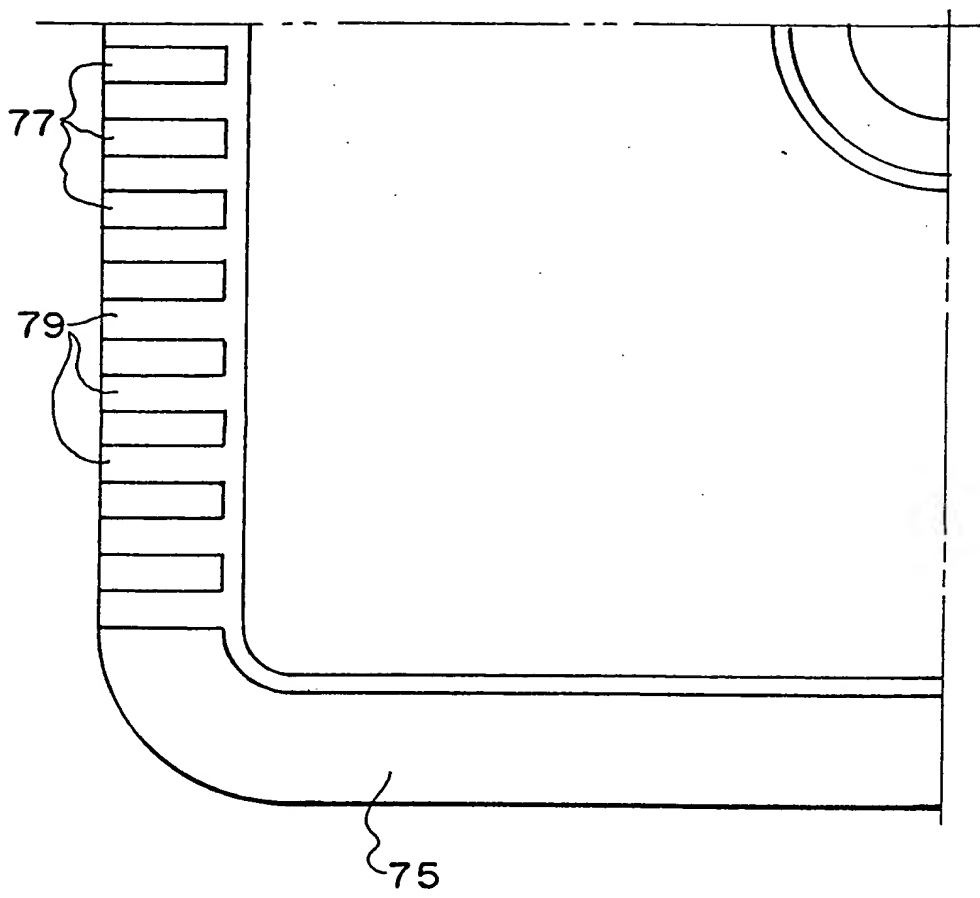


FIG. 8

4a

PATENT OFFICE  
26.FEB98 974399

9/14

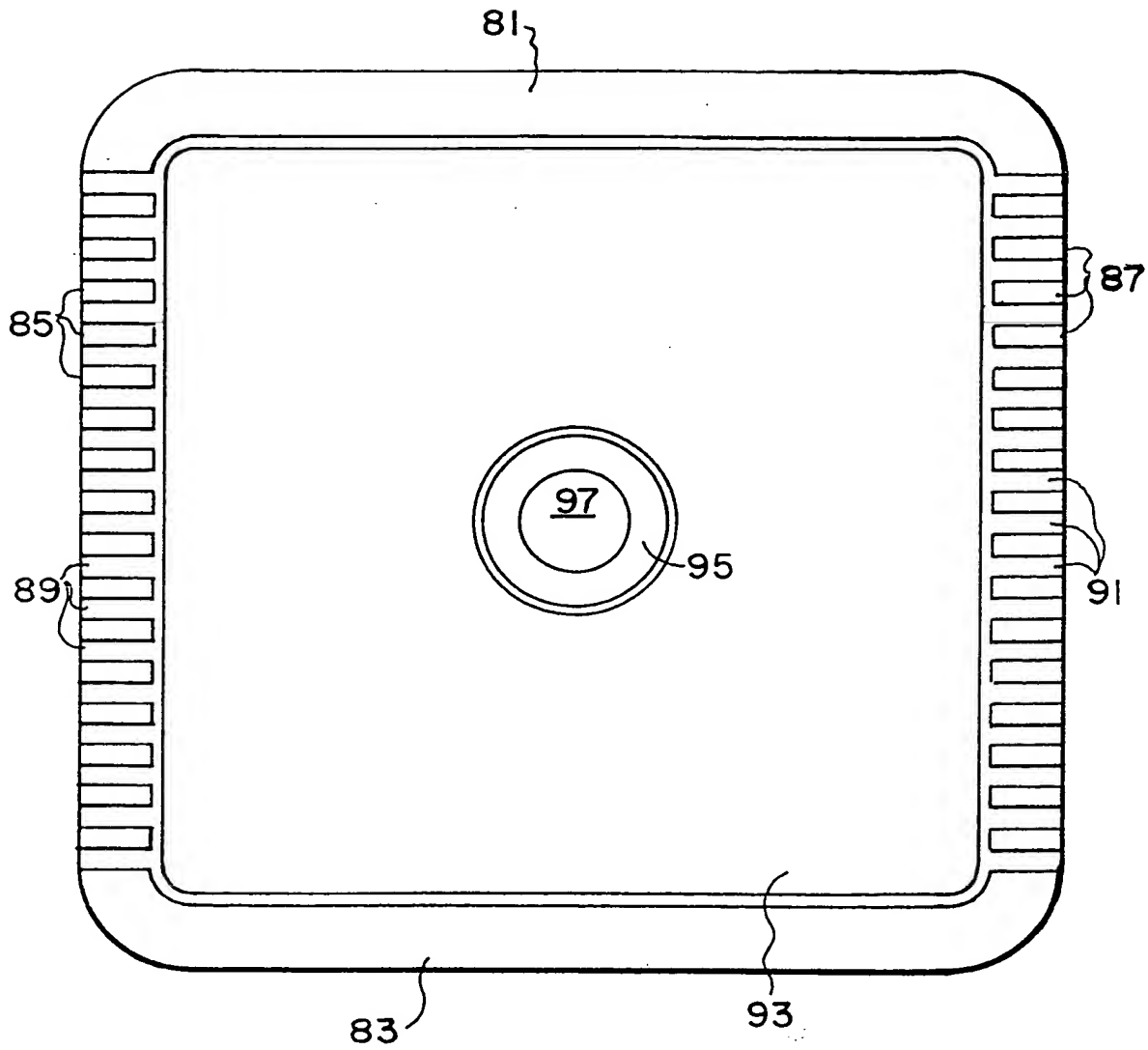


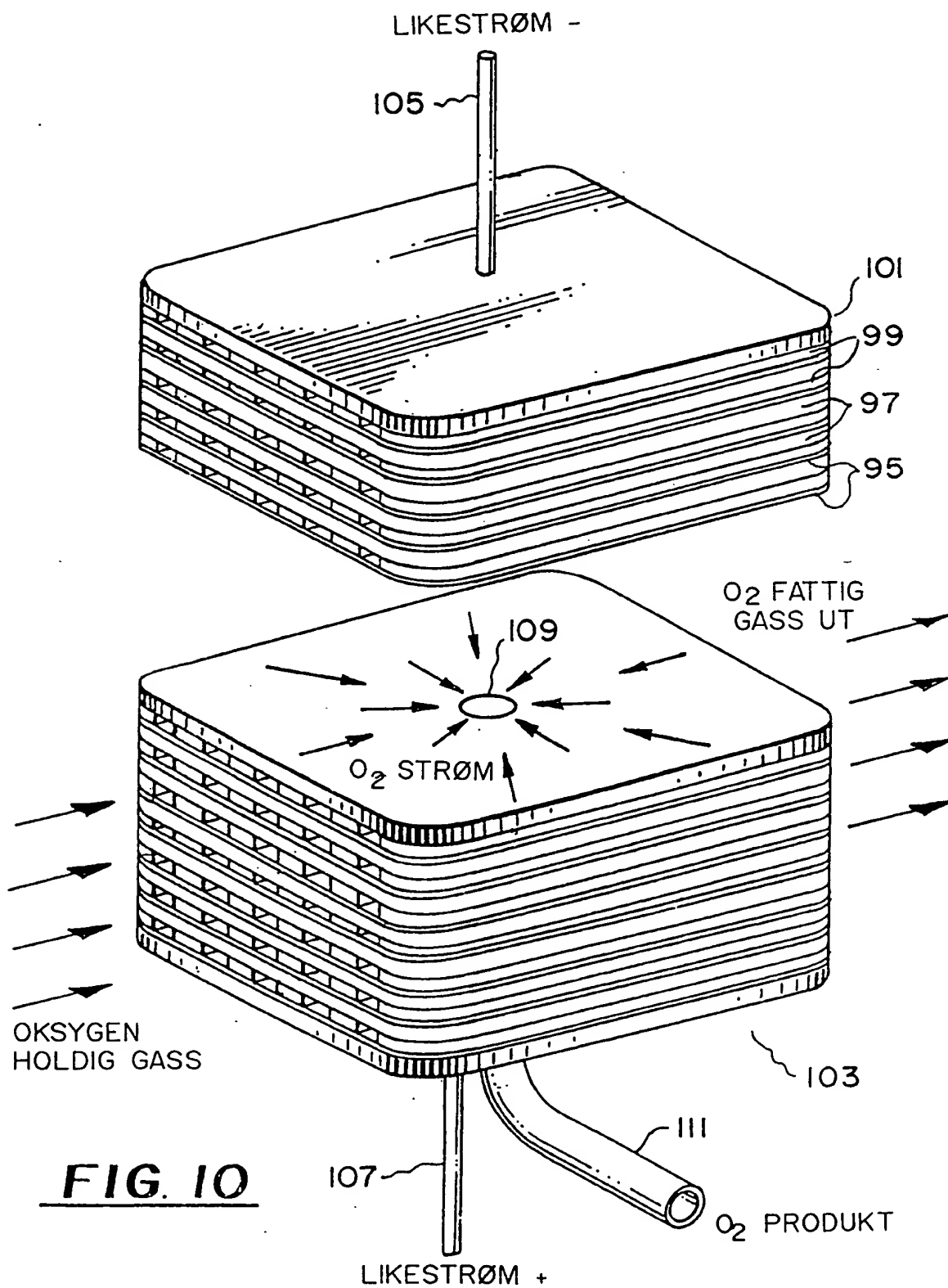
FIG. 9

4a1

PATENTSTYRET

26.FEB98 974399

10/14



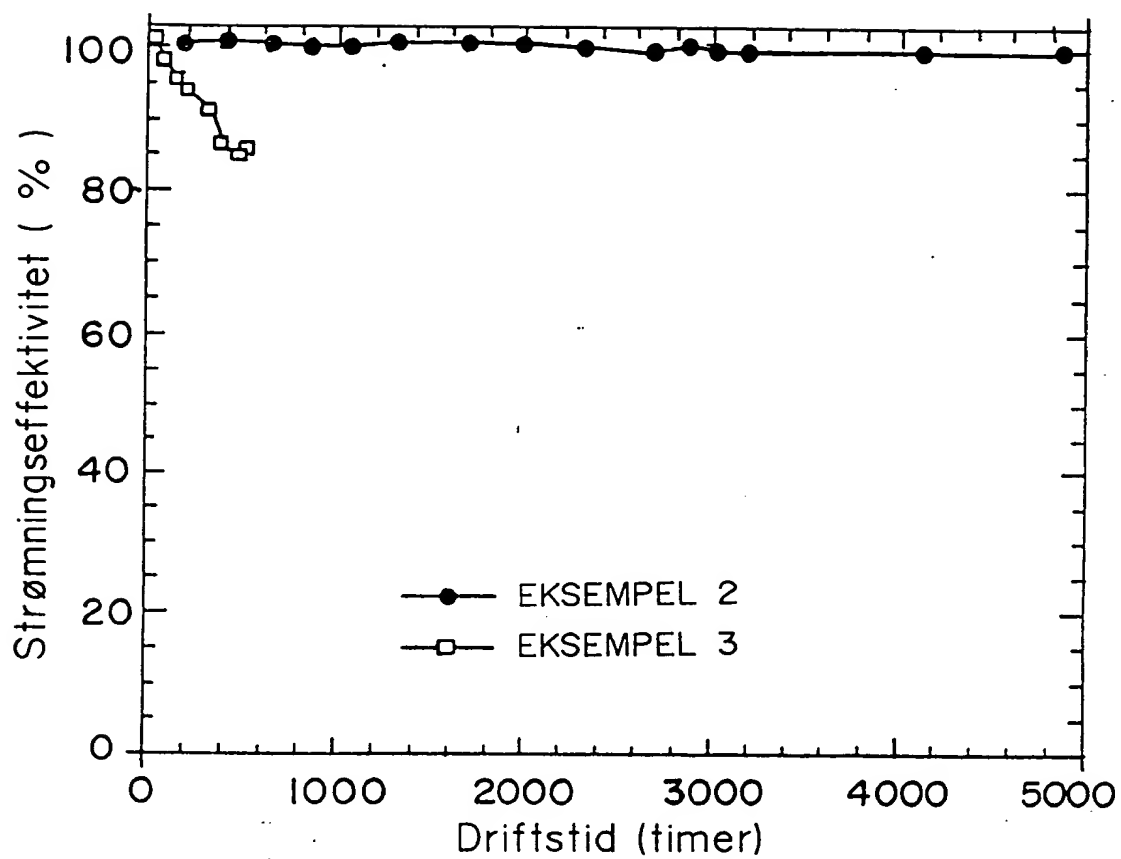
**FIG. 10**

461

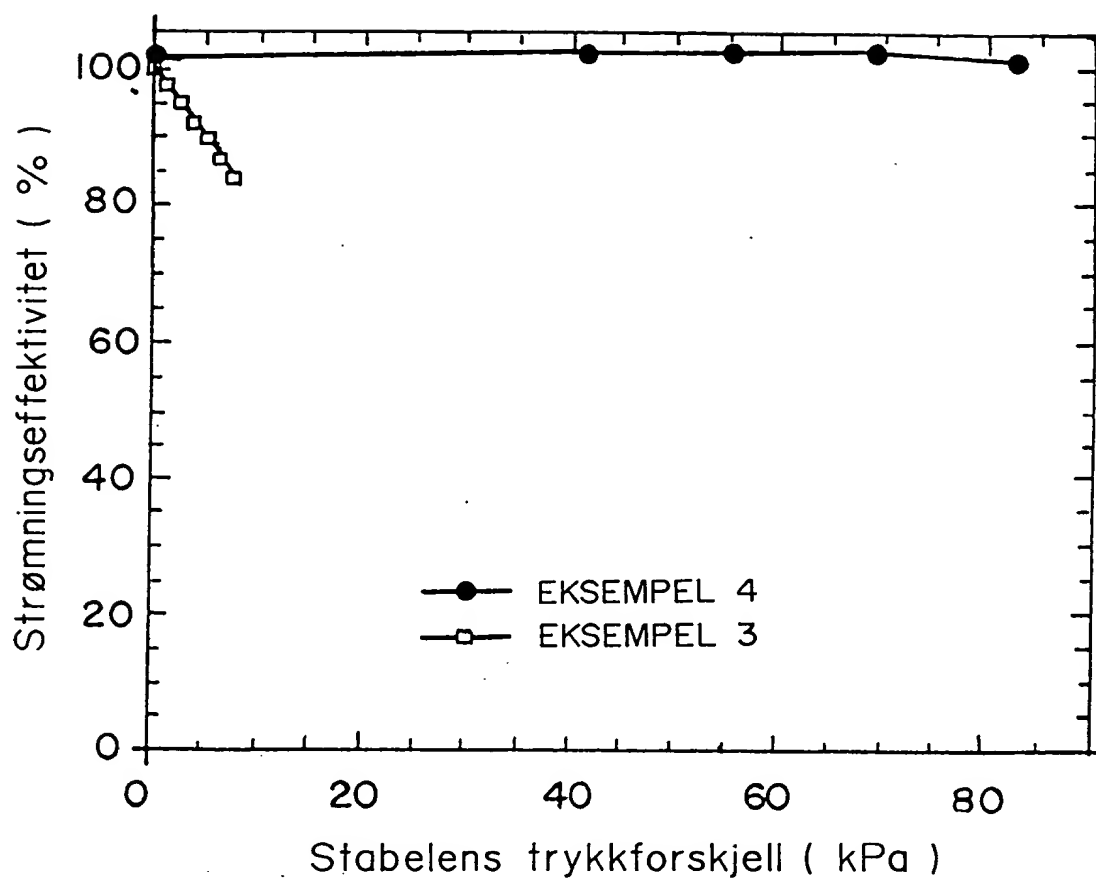
PATENTSTYRET

26.FEB98 974399

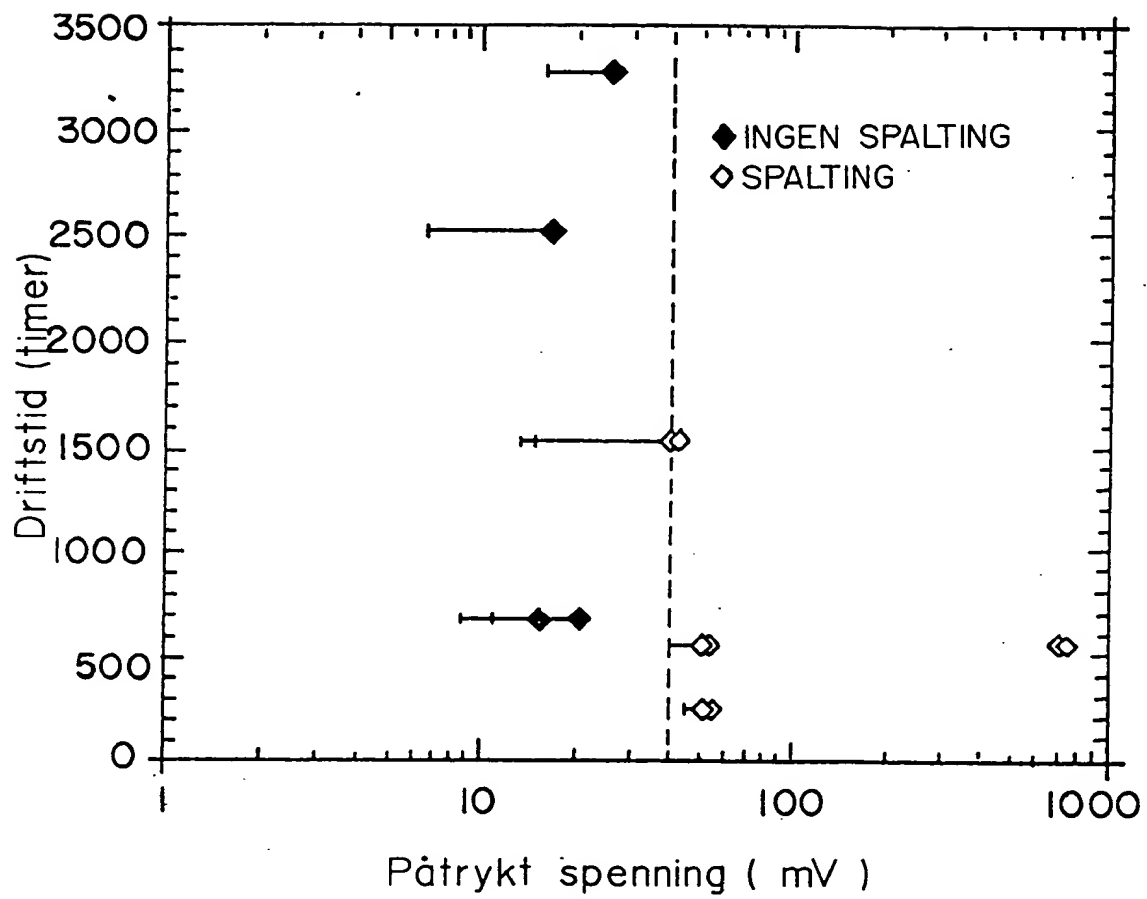
11/14

FIG. II

12/14

FIG. 12

13/14



**FIG. 13**



14/14

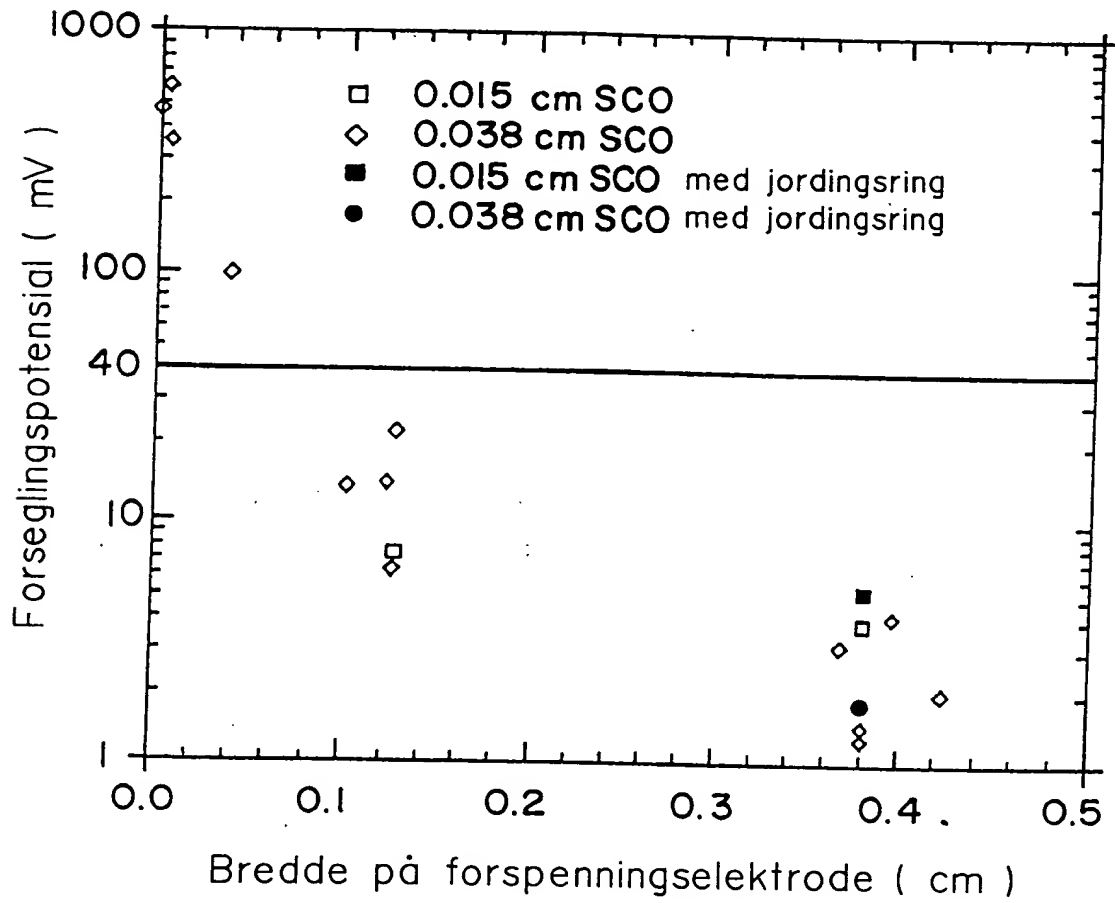


FIG. 14

